

SÉRIE A, N° 3051

N° D'ORDRE :

3923

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

JEAN ROBERT

1^{re} THÈSE. — COMPARAISON DES MÉTHODES DE MICROCALORIMÉTRIE
ADIABATIQUE ET D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE DANS
LES MESURES PRÉCISES DE PÉRIODES RADIOACTIVES.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 11 juin 1957 devant la Commission d'examen.

MM. JOLIOT.....	<i>Président.</i>
LUCAS.....	} <i>Examineurs.</i>
TEILLAC.....	

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

SÉRIE A, N° 3051

N° D'ORDRE :

3923

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

JEAN ROBERT



1^{re} THÈSE. — COMPARAISON DES MÉTHODES DE MICROCALORIMÉTRIE
ADIABATIQUE ET D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE DANS
LES MESURES PRÉCISES DE PÉRIODES RADIOACTIVES.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 11 juin 1957 devant la Commission d'examen.

MM. JOLIOT.....	<i>Président.</i>
LUCAS.....	} <i>Examineurs.</i>
TEILLAC.....	

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen J. PÉRÈS

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	THELLIER	T	Physique du Globe.
E. DARMOIS	T	Enseignement de Physique.	AUDUBERT	T	Electrochimie.
FOCH	T	Mécanique physique et expérimentale.	L'HÉRITIER	T	Génétique.
PAUTHENIER	T	Electrotechnique générale	GRIVET	T	Radioélectricité.
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	PONCIN	T	Mécanique des fluides.
JOB	T	Chimie générale.	THIRY	T	Mécanique appliquée.
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées.	DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.
GARNIER	T	Géométrie supérieure.	QUELET	T	Chimie organique.
PÉRÈS	T	Mécanique des fluides et applications.	CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.
LAUCIER	T	Physiologie générale.	CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.
M. CURIE	T	Physique (P.C.B.).	CUVILLIER	T	Géologie structurale et Géologie appliquée
BAURABÉ	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.	JUNG	T	Pétrographie.
G. DARMOIS	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.	TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.
J. BURCART	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	WIEMANN	T	Chimie organique structurale.
PIANTEFOL	T	Botanique.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et Phys. céleste.
GRASSÉ	T	Evolution des êtres organisés.	VASSY		Physique de l'atmosphère
PRÉVOST	T	Chimie organique.	DESTOUCHES		Théories physiques.
BOULIGAND	T	Application de l'analyse à la Géométrie.	M. PRAVOST	T	Géologie.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	AMIEL	T	Chimie (P.C.B.).
WYART	T	Minéralogie.	HOCART	T	Minéralogie.
TEISSIER	T	Zoologie.	J.-P. MATHIEU	T	Physique (P.C.B.).
MANGENOT	T	Biologie végétale.	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.)
P. AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	MAY		Biologie animale (P.C.B.)
MONNIER	T	Physiologie des fonctions.	CHOQUET	T	Calcul diff. et intégral.
PIVETEAU	T	Géologie.	FELDMANN		Biologie (P.C.B.).
ROCARD	T	Physique (E.N.S.).	GUINIER	T	Physique (P.C.B.).
H. CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.).	JOST	T	Biologie (P.C.B.).
LAFFITTE	T	Chimie générale.	FORTET	T	Calcul des probabilités.
FAVARD	T	Mécanique générale.	SCHWARTZ	T	Méthodes mathématiques de la Physique.
COULOMB	T	Physique du Globe.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.
M ^{lle} COUSIN	T	Biologie animale (P.C.B.)	MALAYARD	T	Aviation.
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	BRELOT	T	Calcul différentiel.
P. DRACH	T	Zoologie.	NORMANT	T	Chimie (P.C.B.).
KASTLER	T	Physique.	BÉNARD	T	Chimie (P.C.B.).
EPHROSSI	T	Génétique.	BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).
WURMSER	T	Biol. physico-chimique.	DUGUÉ	T	Statistiques Math.
RIVIÈRE	T	Géologie (S.P.C.N.).	GELOSO		Chimie (S.P.C.N.).
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.)	SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.
LUCAS	T	Recherches physiques.	ULRICH	T	Physiologie végétale.
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.
ARNULF	T	Optique appliquée.	KIRRMANN	T	Théories chimiques.
M. MORAND	T	Physique.	CHADEFAUD		Botanique.
SOLEILLET	T	Mécanique expérimentale des fluides.	DESTRIAUX		Physique (M.P.C.).
FORTIER	T	Astronomie.	M ^{lle} LE BRETON		Physiologie générale.
DANJON	T	Chimie biologique.	SALEM		Mathématiques générales.
FROMAGEOT	T	Physique générale et Radioactivité.	LELONG	T	Mathématiques générales.
LAPORTE	T	Mécanique analytique et Mécanique céleste.	DEVILLERS		Anatomie et Histologie comparées.
JANET	T	Biologie maritime.	EHRESMANN	T	Topologie algébrique.
QUÉNEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.	FRANÇON		Physique (M.P.C.).
GALLIEN	T	Embryologie.	GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique.
EICHORN	T	Biologie végétale (P.C.B.)	GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.)
DE CUGNAC		Biologie végétale (P.C.B.)	PISOT	T	Calcul des probabilités.
M ^{lle} CAUCHOIS	T	Chimie physique.	E. ROCH		Géologie.
			SCHATZMANN		Astrophysique.
			TERMIER	T	Paléontologie stratigraphique.
			ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.
			JOLIOT	T	Physique nucléaire et Radioactivité.

Secrétaire Général C. MONIER.

Ces travaux ont été effectués au laboratoire Curie de l'Institut du Radium, au titre d'Attaché de recherches du Centre National de la Recherche Scientifique.

Je tiens à exprimer ici le témoignage de ma gratitude émue au souvenir de Mme Joliot-Curie qui a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire et qui m'a fourni les moyens de réaliser ce travail. J'adresse ma reconnaissance la plus respectueuse à M. le Professeur F. Joliot qui a bien voulu s'intéresser à mes recherches et m'a permis de terminer cette étude.

Je désire remercier tout particulièrement M. Lecoin qui a constamment suivi mes recherches et dont l'expérience en calorimétrie m'a été des plus précieuses. Je remercie M. Bouchez et M. Tobaillem qui ont eu la charge de me guider dans mes premières études concernant les chambres d'ionisation. Mes remerciements vont également au Service de préparation des sources du laboratoire Curie, et en particulier à M. Bouissières. J'exprime enfin toute ma gratitude à mes camarades ainsi qu'au personnel technique du laboratoire, qui m'ont aidé dans mes travaux.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

COMPARAISON DES MÉTHODES DE MICROCALORIMÉTRIE ADIABATIQUE ET D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE DANS LES MESURES PRÉCISES DE PÉRIODES RADIOACTIVES ⁽¹⁾

Par JEAN ROBERT

SOMMAIRE

INTRODUCTION.

PREMIÈRE PARTIE. — *Mesures de périodes radioactives au moyen d'un dispositif de chambres d'ionisation différentielle.*

CHAPITRE PREMIER. — La méthode d'ionisation différentielle.

CHAPITRE II. — Description de l'appareillage.

CHAPITRE III. — Caractéristiques de l'installation.

CHAPITRE IV. — Pratique des mesures.

CHAPITRE V. — Résultats expérimentaux : RaE, ^{32}P , ^7Be .

DEUXIÈME PARTIE. — *Principe des mesures calorimétriques des sources radioactives.*

CHAPITRE PREMIER. — La méthode de microcalorimétrie adiabatique.

CHAPITRE II. — Description de l'appareillage.

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques, et soutenue le 11 juin 1957, devant la Commission d'examen.

CHAPITRE III. — Dispositif de compensation automatique.

CHAPITRE IV. — Pratique des mesures.

CHAPITRE V. — Discussion de la méthode.

TROISIÈME PARTIE. — *Résultats expérimentaux (calorimétrie).*

CHAPITRE PREMIER — Mesures de périodes radioactives : Rn, Ac, AcX.

CHAPITRE II. — Comparaison des étalons de radium ; période du RaD

CONCLUSION.

INTRODUCTION

Depuis la découverte de la radioactivité naturelle en 1896 par Becquerel, P. et M. Curie, de nombreuses méthodes ont été mises en œuvre permettant la mesure des périodes radioactives. Depuis lors, la découverte de la radioactivité artificielle en 1934 par F. et I. Joliot a multiplié très rapidement le nombre des radioisotopes connus. Les mesures de périodes ont contribué pour une bonne part à l'identification et à la classification de ces nouveaux noyaux et ont permis de progresser peut à peu dans l'étude de la structure de la matière.

L'une des méthodes les plus anciennes, pour les mesures de périodes radioactives, utilise la chambre d'ionisation. Plus tard, il a été fait usage du dispositif de deux chambres d'ionisation montées en opposition : cette méthode a été utilisée pour la première fois par Mme Curie (16). et par I. Curie et C. Chamié (19) pour la mesure de la période du radon. Depuis lors, plusieurs expérimentateurs ont repris cette méthode, et récemment J. Tobaillem (56), au Laboratoire Curie, a employé un dispositif de deux chambres reliées à une lampe électromètre, les mesures étant faites par la méthode de vitesse de déviation ; dans cette installation, les sources radioactives étaient situées au-dessous des chambres et une faible partie du rayonnement était utilisée.

Nous avons cherché à augmenter la sensibilité de ce dispositif et nous avons mis au point un nouvel ensemble de deux chambres d'ionisation ; les sources étaient situées au centre des chambres, l'angle solide utile était par suite sensiblement de 4π stéradians. Nous avons étudié avec cet appareillage des radioéléments émetteurs γ (^7Be) ou β purs (^{32}P , RaE).

Nous avons ensuite été amenés à remonter une installation de micro-calorimétrie, en collaboration avec M. Lecoin, destinée, en principe, à

la comparaison précise des étalons de radium. Cette étude nous a incité à poursuivre nos mesures de périodes en utilisant la méthode calorimétrique qui s'est trouvée présenter de nombreux avantages sur les méthodes d'ionisation, particulièrement en ce qui concerne les émetteurs α et les fortes sources radioactives, en général.

Néanmoins, la méthode calorimétrique, telle qu'elle était utilisée au laboratoire avant la guerre, ne permettait pas des mesures de longue durée et restait d'un emploi encore incertain. C'est pourquoi nous avons mis au point un nouveau dispositif de compensation entièrement automatique qui nous a permis d'augmenter dans de grandes proportions la précision des mesures. Nous avons vérifié la validité de la méthode en mesurant la période du radon, puis nous avons abordé les périodes de corps émetteurs α et β (Ac, AcX); enfin nous avons procédé à la comparaison précise des étalons de radium, problème intimement lié à la période du RaD.

L'emploi simultané de ces deux méthodes de mesure nous a permis de fructueuses comparaisons sur l'opportunité de chacune d'elles dans des cas bien déterminés.

PREMIÈRE PARTIE

MESURES DE PÉRIODES RADIOACTIVES AU MOYEN D'UN DISPOSITIF DE DEUX CHAMBRES D'IONISATION DIFFÉRENTIELLE

CHAPITRE PREMIER

La méthode d'ionisation différentielle.

La méthode d'ionisation différentielle consiste essentiellement à mesurer la différence des courants d'ionisation de deux chambres montées en opposition. L'une des chambres, en général, est irradiée par une source d'intensité pratiquement constante pendant la durée de l'expérience, l'autre chambre est irradiée par la source que l'on étudie : il est possible dans ces conditions de suivre la variation de l'intensité de cette source par rapport à la première. Un tel montage est très sensible et permet de mesurer des sources de l'ordre du microcurie. Il présente, en outre, l'avantage d'être d'une grande stabilité : l'expé-

rience une fois commencée peut durer des semaines et des mois, ce qu'il serait impossible de réaliser avec des montages comportant des compteurs Geiger-Müller ou des compteurs à scintillation.

Cette méthode permet donc la mesure des périodes radioactives comprises entre quelques heures et quelques années, les sources étant suivies pendant quelques jours ou quelques mois suivant la précision recherchée.

La mesure du courant d'ionisation créé dans les chambres, de l'ordre de 10^{-13} à 10^{-10} A, peut être effectuée au moyen d'un électromètre à quadrants ou d'une lampe électromètre. La méthode de mesure de ce courant sera soit une méthode de vitesse de déviation du spot, soit une méthode de zéro : le courant produit sera, dans ce dernier cas, compensé par la méthode de Townsend ou le quartz piézoélectrique.

Cette méthode d'ionisation différentielle a été décrite pour la première fois par Rutherford (48) en 1911.

En 1924, Marie Curie (16) l'a utilisée pour tenter de déceler une différence de période entre deux ampoules de radon de concentration différente : les chambres étaient reliées à un électromètre à quadrants, le courant mesuré par la méthode du quartz piézoélectrique. La même année, I. Curie et C. Chamié (19) ont employé le même dispositif pour mesurer avec une grande précision la période du radon et pour comparer des ampoules de radon d'âge différent. En 1933, la méthode a été reprise par A. Piccard et L. Meylan (43) pour la mesure de sources de radium, l'électromètre étant toujours employé. En 1949, R. Bouchez, A. Rogozinski, P. et R. Daudel et R. Muxart (6) au laboratoire Curie, E. Segré et C. E. Wiegand (36) aux U. S. A. ont utilisé cette méthode pour mettre en évidence une différence de période entre des sources de ^7Be de composition chimique différente, la transformation de ^7Be par capture K faisant intervenir le degré d'ionisation de l'atome ; l'appareillage comportait une lampe électromètre. Enfin, J. Tobailem (56) a perfectionné cette méthode et mesuré diverses périodes radioactives avec précision en 1950-1954 ; les mesures étaient faites par la méthode de vitesse de déviation ; les sources étaient placées à l'extérieur des chambres.

Nous avons utilisé l'installation de J. Tobailem pour mesurer, aux débuts de nos travaux, la période du Th B (57) et du ^{204}Tl (58). Nous avons ensuite essayé d'augmenter la sensibilité du dispositif et nous avons mis au point un nouvel ensemble de deux chambres d'ionisation de plus grandes dimensions ; ces chambres sont étanches et peuvent supporter une pression de 4 kg/cm^2 ; les sources sont situées à l'intérieur des chambres.

La mesure des courants d'ionisation est effectuée au moyen d'un dispositif électrométrique comportant une lampe électromètre. Nous avons utilisé pour cette mesure la méthode de Townsend.

CHAPITRE II

Description de l'appareillage.

1) **Les chambres d'ionisation.** — Les chambres d'ionisation se présentent sous forme de deux cylindres de laiton de 20 cm de diamètre et 20 cm de hauteur; leur volume est approximativement de 6 litres. L'épaisseur des parois est de 2 mm. Chaque chambre est entourée d'un blindage de 2 mm de laiton et 5 mm de plomb afin de réduire le mouvement propre dû à la radioactivité ambiante; elles sont séparées par un écran de plomb de 10 cm d'épaisseur de façon que la source placée dans l'une d'elles ne produise pas d'ionisation dans l'autre.

Les sources radioactives sont placées dans une cavité cylindrique co-axiale à chaque chambre, de 4 cm de diamètre et 15 cm de hauteur, qui comporte à la partie inférieure une fenêtre mince d'aluminium (0,18 mm) permettant le passage des rayons β . Elles peuvent être descendues plus ou moins profondément dans cette cavité au moyen d'un dispositif à crémaillère qui prend appui sur le cylindre de blindage de la chambre. Cette crémaillère comporte un vernier au vingtième de millimètre permettant, en principe, de placer les sources dans des positions toujours identiques. Au bas de cette crémaillère s'adapte une tige de plexiglas à la partie inférieure de laquelle on peut visser le porte-source: soit un tube de plexiglas si les sources sont des ampoules, soit des supports convenables si les sources ont été déposées sur feuille.

Une série d'écrans cylindriques, d'épaisseurs et de natures diverses (Al, Cu, Pb), peuvent être placés à l'intérieur de la cavité. Ils permettent de filtrer le rayonnement émis et par conséquent de régler la valeur de l'intensité d'ionisation.

Cette disposition donne aux chambres d'ionisation un angle solide utile très voisin de 4π stéradians.

Les chambres sont étanches et peuvent supporter une pression de 4 kg/cm². Elles sont reliées par un tube de laiton en forme d'Y sur les trois branches duquel se trouve placé un robinet; cette disposition permet à volonté d'isoler les chambres ou de les laisser en communication tout en les isolant de l'extérieur, de façon à maintenir égale et constante leur pression.

Chaque chambre comporte une électrode collectrice axiale: c'est une feuille de cuivre cylindrique, de 10 cm de hauteur; la sortie s'effectue par un passage isolé étanche en polystyrène avec anneau de garde. Les deux sorties sont connectées électriquement et reliées d'une part au montage électrométrique, d'autre part à un condensateur étalon; ces connexions sont placées à l'intérieur d'un tube de laiton de section

carrée assurant un blindage convenable ; on distingue ce tube sur la figure 1, au tiers de hauteur des chambres.

La capacité d'entrée du montage est située dans un tube de laiton dont l'intérieur est desséché par une ampoule contenant de l'anhydride phosphorique.

La lampe électromètre est placée dans une enceinte vidée ; elle est

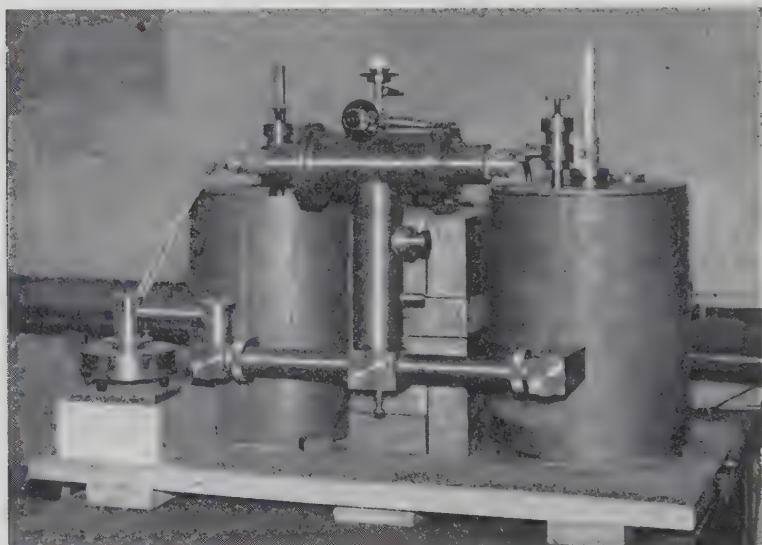


Fig. 1.

protégée des champs électriques et magnétiques par un double blindage en laiton et en mumétal.

Les deux chambres sont portées à des tensions opposées d'environ 1 600 V. Chacune d'elles est reliée à une série de 12 piles de 135 V de grande stabilité.

2) **Le montage électrométrique.** — Ce montage a été décrit par Tobaillem (56). Nous ne ferons qu'en rappeler brièvement le principe.

Le courant d'ionisation provenant des chambres traverse une résistance très élevée placée entre la grille de la lampe électromètre et la masse ; la variation du potentiel de grille provoque une variation du courant-plaque que l'on mesure au moyen d'un galvanomètre.

Le filament est polarisé par rapport à la grille au moyen d'une pile V_0 débitant dans un potentiomètre. Le courant permanent de plaque est compensé, dans le circuit du galvanomètre, par le courant opposé d'un

montage potentiométrique comprenant une pile V , dite de compensation, débitant dans une chaîne de résistances R_2, R_3, R_4, R_5 : ce montage permet de ramener le spot au zéro en agissant sur les résistances variables R_3 et R_5 . Le courant de compensation dépend également de la tension V_F , l'accumulateur de chauffage du filament étant monté en opposition avec V : de cette manière, en choisissant convenablement R_2 et R_4 , on arrive à compenser automatiquement les variations de V_F , et on annule à peu près complètement la dérive du spot provoquée par la décharge lente de l'accumulateur (fig. 2).

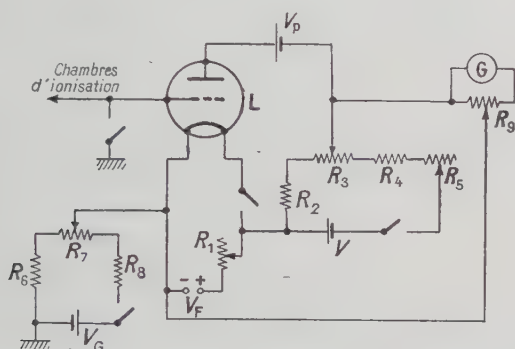


Fig. 2. — Schéma du montage électrométrique.

L : Lampe électromètre Victoreen 5803.
 V_F : Accumulateur du chauffage du filament.
 V_G : Pile 3 V — V_p : Pile 4,5 V — V : Pile 1,5 V.
 R_1 : 50 Ω — R_2 : 90 k Ω — R_3 : 10 k Ω .
 R_4 : 75 k Ω — R_5 : 5 k Ω — R_6 : 350 k Ω .
 R_7 : 50 k Ω — R_8 : 325 k Ω — R_9 : 50 k Ω .
 G : Galvanomètre Sefram ST2 D.

La lampe électromètre utilisée est une triode Victoreen, type 5803. Ses conditions de fonctionnement sont les suivantes :

$$\begin{array}{ll} V_F = 1,25 \text{ V} & V_p = 4,5 \text{ V} \\ I_F = 10 \text{ mA} & V_G = -1,6 \text{ V.} \end{array}$$

Le filament de la lampe est chauffé par un accumulateur cadmium-nickel de 1,3 V, de grande capacité (110 A.heures); la tension aux bornes du filament peut être réglée au moyen d'un rhéostat. Les autres sources de tension, ne débitant pratiquement pas, sont données par des piles.

La capacité d'entrée du montage est de 1 000 pf; la résistance est donnée par la résistance d'isolement de la capacité, soit $2,5 \cdot 10^{12}$ ohms.

La pente de la lampe est de l'ordre de 15 $\mu\text{A/V}$, dans la partie recti-

ligne de la caractéristique, soit pour une tension-grille de $-1,5$ V. Le courant-grille est alors de l'ordre de 10^{-14} A.

Le galvanomètre utilisé dans notre montage est un galvanomètre anti-vibratoire Sefram, type ST 2D à échelle incorporée. Il présente les caractéristiques suivantes :

Résistance du cadre	145 ohms
Résistance extérieure critique	∞
Sensibilité maximum	$1,27 \times 10^{-9}$ A/mm.

On définit la sensibilité S en tension du montage comme étant la déviation δ du spot du galvanomètre provoquée par une variation du potentiel de grille ΔV_g de 1 V :

$$S = \frac{\delta}{\Delta V_g}.$$

Si l'on appelle σ la sensibilité du galvanomètre et μ la pente de la caractéristique $I_p = \mu V_g$ ($\mu = 15 \mu\text{A/V}$), on aura :

$$S = \sigma \mu$$

soit :

$$S = 12\,000 \text{ mm/V.}$$

Autrement dit, une déviation du spot de 1 mm correspond à une variation du potentiel de grille de $80 \mu\text{V}$, c'est-à-dire encore à un courant d'ionisation de $3 \cdot 10^{-17}$ A.

Le potentiomètre R_9 permet de diminuer à volonté cette sensibilité.

3) Méthode de compensation de Townsend. — On mesure le courant d'ionisation différentielle par une méthode de zéro : la méthode de Townsend. Les charges produites par les sources radioactives dans les chambres sont compensées par la charge progressive d'un condensateur de capacité C . Si le potentiel varie de 0 à V aux bornes de condensateur et si t est la durée de compensation, l'intensité du courant d'ionisation différentielle s'écrit simplement :

$$i = \frac{CV}{t}.$$

La manipulation consiste à maintenir au zéro le spot du galvanomètre pendant la durée t de la mesure en chargeant progressivement le condensateur, monté en opposition avec les chambres, au moyen d'un potentiomètre de grande sensibilité.

La source de tension est une batterie d'accumulateurs au plomb de grande stabilité, dont la capacité est de 60 A heure.

La différence du potentiel V est mesurée au moyen d'un pont AOIP, type P 12 permettant d'obtenir une précision de 10^{-4} .

Le condensateur est un condensateur étalon de 30, 0UES.

CHAPITRE III

Caractéristiques de l'installation.

1) **Sensibilité.** — On définit la sensibilité d'une chambre comme étant le courant d'ionisation produit par 1 microcurie de radium.

La sensibilité d'une chambre dépend étroitement de la position des sources. Dans notre installation la crémaillère porte-source permet de régler cette position à un vingtième de millimètre près en hauteur sur une hauteur de 10 cm.

On a étudié la variation de sensibilité des chambres en fonction de la position des sources, les chambres étant maintenues remplies d'air à la pression de 1 kg/cm² mais cependant fermées pour éviter toute variation de pression.

Pour une source située au centre de la chambre, la sensibilité par microcurie de radium est :

$$S = 2,2 \cdot 10^{-4} \text{ UES} = 7,5 \cdot 10^{-14} \text{ A},$$

le radium étant filtré par 2 mm de plomb.

La courbe ci-après (fig. 3) donne la variation de S en fonction de la distance x de la source au centre de la chambre. Cette courbe montre que S varie peu pour x petit, autrement dit la sensibilité des chambres varie peu lorsque la source est près du centre. Cette circonstance favorable permet d'enlever et de remettre les sources en étant certain de revenir à très peu près dans la même zone de sensibilité.

Néanmoins, pour des mesures très précises telles que des mesures de période par ionisation différentielle, il est absolument exclu d'enlever les sources entre deux mesures. L'expérience a montré que divers facteurs (jeu dans la crémaillère, épaisseur non rigoureusement constante des écrans, etc.) interviennent pour donner une variation alors non négligeable du courant mesuré.

C'est là un inconvénient de ce type de chambres, que l'on ne trouve pas dans les dispositifs à porte-source extérieur.

Nous avons également mesuré la sensibilité de notre appareil en uranium, la source étant constituée par un minerai très riche en

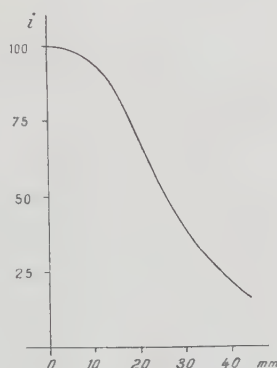


Fig. 3. — Variation du courant d'ionisation en fonction de la distance de la source au centre de la chambre.

uranium, vraisemblablement en équilibre avec ses dérivés ; la source étant au centre de la chambre filtrée par 2 mm de plomb, nous avons trouvé :

$$S = 2,25 \cdot 10^{-5} \text{ UES par gramme de minerai,}$$

ce qui vient à dire que 1 kg de minerai donne le même courant d'ionisation que 107 microcuries de radium.

Cette étude avait pour but le remplacement éventuel de la source de radium de compensation par une source d'uranium. La grande quantité d'uranium nécessaire devait alors être placée à l'extérieur de la chambre. Dans les meilleures conditions, en effet, il était nécessaire de disposer de 36 kg de minerai d'uranium pour compenser 1 millurie de radium.

2) **Saturation.** — Nous avons déterminé la tension de polarisation des chambres de manière à atteindre avec une précision suffisante la saturation pour les plus fortes sources appelées à être mesurées, en d'autres termes, nous avons établi dans les chambres un champ électrique suffisant pour que la totalité des ions produits par les sources soient collectés par les électrodes. Les mesures ont été faites les chambres étant remplies d'air à la pression atmosphérique.

La saturation a été étudiée par deux méthodes : sources additionnelles et tension variable.

a) **MÉTHODE DES SOURCES ADDITIONNELLES.** — Rappelons brièvement le principe de cette méthode : on dispose d'un porte-source pouvant recevoir deux sources S_1 et S_2 dans des positions bien déterminées ; les mesures successives de S_1 et S_2 donnent les courants d'ionisation i_1 et i_2 . S'il y a saturation, la mesure simultanée de S_1 et S_2 dans les mêmes positions que précédemment donnera un courant i_3 tel que :

$$i_3 = i_1 + i_2.$$

Nous avons contesté la validité de cette méthode pour les mesures de périodes qui font intervenir de très faibles courants différentiels. Par contre, cette méthode peut être parfaitement utilisée dans le cas présent, les courants d'ionisation étant beaucoup plus intenses.

b) **UTILISATION D'UNE TENSION VARIABLE.** — C'est une méthode différentielle, plus sensible que la précédente. En voici le principe : on réalise l'égalité des courants dans les deux chambres pour une tension déterminée, puis on diminue progressivement la tension de l'une des chambres ; le moindre défaut de saturation provoque un déséquilibre du dispositif, c'est-à-dire l'apparition d'un courant différentiel.

Ces deux expériences ont montré que pour des tensions de 1 500 V, la saturation est assurée à 10^{-3} près pour des courants d'ionisation de

0,3 UES : c'est dire que l'on peut mesurer avec ces chambres des sources de radium de 1 millicurie dont le rayonnement est filtré par 2 mm de plomb.

3) *Mouvement propre.* — Le courant de mouvement propre total fait intervenir trois grandeurs : le mouvement propre de chaque chambre i_1 et i_2 , et le courant grille i_g . On détermine ces quantités en mesurant le courant total pour chaque polarité des tensions appliquées aux deux chambres. On obtient ainsi quatre équations :

$$\text{Tensions } \pm 1500 \text{ V et } \pm 1500 \text{ V : } i = \pm i_1 \pm i_2 + i_g.$$

Les valeurs trouvées permettront de choisir définitivement le signe des tensions à appliquer aux deux chambres (+ 1500 et — 1500 ou bien — 1500 et + 1500 pour les chambres 1 et 2 respectivement) : afin d'avoir le mouvement propre total le plus faible possible, on fera en sorte que $|i_1 - i_2|$ soit opposé à i_g .

On a obtenu les résultats suivants :

$$\begin{aligned} i_g &= 7,5 \cdot 10^{-5} \text{ UES} = 2,5 \cdot 10^{-14} \text{ A ;} \\ i_1 &= 4,5 \cdot 10^{-5} \text{ UES} = 1,5 \cdot 10^{-14} \text{ A ;} \\ i_2 &= 9 \cdot 10^{-5} \text{ UES} = 3 \cdot 10^{-14} \text{ A.} \end{aligned}$$

Le mouvement propre de chaque chambre correspond à la formation d'environ 15 et 30 paires d'ions par centimètre cube et par seconde, respectivement. Le mouvement propre plus grand de l'une des chambres provient d'une contamination accidentelle en cours de construction.

Le courant de mouvement propre total est de l'ordre de :

$$I = 3 \cdot 10^{-5} \text{ UES} = 10^{-14} \text{ A.}$$

Ce courant est le même que celui-ci qui serait produit par 0,1 microcurie de radium environ.

Il est intéressant de comparer ces chiffres avec ceux relatifs au dispositif précédemment utilisé par J. Tobailem (56).

	Chambres Tobailem	Présent appareillage
Sensibilité en UES par microcurie de radium .	$3 \cdot 10^{-5}$	$22 \cdot 10^{-5}$
Mouvement propre (UES)	$< 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-5}$

Nous avons gagné un facteur compris entre 5 et 10 en ce qui concerne la sensibilité. Malheureusement, un mouvement propre trop grand nous a limité dans la mesure des très faibles sources (inférieures à 0,1 microcurie).

CHAPITRE IV

Pratique des mesures.

Nous avons vu plus haut que la grande sensibilité des chambres d'une part, les questions de saturation d'autre part, exigent l'emploi de sources de faible activité. On commence donc par mesurer grossièrement l'intensité de la source dont on cherche la période et, si c'est nécessaire, on diminue cette intensité en absorbant par des écrans appropriés une partie du rayonnement.

On choisit la source de compensation, en général un étalon de radium, de façon que son intensité ne soit pas trop différente de l'intensité de la source étudiée. On place ensuite l'étalon de radium dans son support et on le descend dans l'une des chambres à l'aide de la crémaillère que l'on bloque de façon définitive. En l'absence de toute autre source, on mesure le courant d'ionisation de l'étalon de radium dans cette position.

On descend ensuite la source étudiée dans la deuxième chambre de la même façon et on règle sa position en hauteur de manière à compenser le plus exactement possible l'étalon de radium. La décroissance de cette source va provoquer un déséquilibre du dispositif, autrement dit il apparaîtra un courant différentiel qui ira en augmentant constamment.

Soient I_0 l'intensité de la source de radium mesurée seule dans la première chambre, I l'intensité de la source étudiée et λ sa constante radioactive.

A l'équilibre, au temps $t=0$, nous avons :

$$I_0 = I.$$

Au temps t , la source a décru, sa valeur est devenue $Ie^{-\lambda t}$; on mesure donc un courant différentiel i tel que :

$$i = I_0 - Ie^{-\lambda t} = I_0 (1 - e^{-\lambda t})$$

soit :

$$\lambda t = \text{Log} \frac{I_0}{I_0 - i}.$$

L'expérience consiste à mesurer i pour différentes valeurs de t , et I_0 qui ne varie pratiquement pas, la période du radium étant très longue (environ 1 600 ans) devant la durée des mesures. L'analyse des points trouvés, par la méthode des moindres carrés, donne λ et par conséquent la période T .

Pour diminuer les fluctuations, on a toujours utilisé comme source

de compensation un étalon de radium dont le rayonnement était filtré par 2 mm de plomb ; de cette manière les rayons α et β sont complètement absorbés et seul le rayonnement γ est utilisé.

CHAPITRE V

Résultats expérimentaux.

Nous avons mesuré avec notre installation les périodes radioactives de corps émetteurs γ (^7Be) ou β (^{32}P ; RaE). Nous avons également participé à une longue étude tendant à mettre en évidence une variation de période du ^7Be dépendant de sa nature chimique.

Toutes ces mesures ont été faites les chambres étant remplies d'air à la pression atmosphérique et fermées de manière à éviter toute variation de pression en cours d'expérience.

1) *Période du RaE* (^{210}Bi). — En 1931, la Commission internationale des Etalons de Radium (29) a adopté comme valeur de la période du RaE : $T = 5$ jours, aucune limite d'erreur n'étant précisée. En 1935, Mlle Pompéi (44) du laboratoire Curie, a indiqué la valeur $5,02 \pm 0,01$ jours. En 1952, Begemann et Houtermans (4) ont trouvé $5,02 \pm 0,02$ jours. Enfin, Lockett et Thomas (37) en 1953 ont donné $4,989 \pm 0,013$ jours.

Le RaE décroît en émettant des rayons β d'énergie maximum 1,17 MeV, non accompagnés de rayons γ , pour donner le ^{210}Po . Ce dernier se transforme en ^{206}Pb , stable, par émission α ; il émet également des rayons γ mais en si faible proportion ($1,21.10^{-5}$) qu'ils n'interviennent pratiquement pas.

Etant un émetteur β pur, le RaE est utilisé comme étalon β ; de ce fait, sa période a une grande importance en métrologie. Il nous a donc semblé intéressant de la mesurer de nouveau avec notre dispositif afin de préciser encore sa valeur.

La source de RaE a été préparée par extraction à partir du RaD et dépôt sur une petite feuille de nickel de 2 cm de diamètre. Cette feuille, placée au centre de la chambre, a été soigneusement mise à la masse, sur les conseils de M. Lecoin, de façon à éviter l'accumulation de charges électriques sur le support. Cette source de RaE donnait le même courant d'ionisation qu'une source de radium de 1,1 millicurie filtrée par 2 mm de plomb. La source de compensation était un étalon de radium de 2 millicuries.

Notre étude a duré 2 jours : 18 séries de mesures ont été faites durant 40 heures. De plus, une dernière mesure faite 1 mois plus tard a per-

mis de vérifier l'absence de toute impureté radioactive de longue période (radium).

La figure 4 représente la variation de : $\text{Log} \frac{I_0}{I_0 - i}$ en fonction du temps t , I_0 étant le courant d'ionisation dû à la source de compensation et i le courant d'ionisation différentielle. L'analyse des mesures par la méthode des moindres carrés a permis d'obtenir comme valeur de la période :

$$T = 5,013 \pm 0,005 \text{ jours}$$

ce qui correspond à une constante radioactive :

$$\lambda = (1,600 \pm 0,002) \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}.$$

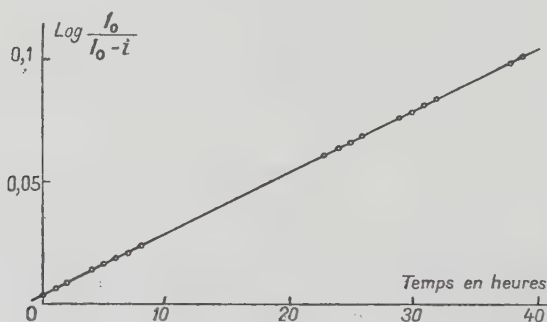


Fig. 4. — Période du RaE.

La précision est de 10^{-3} . L'erreur indiquée est l'erreur quadratique moyenne.

Cette valeur, en accord avec la plupart des résultats antérieurs, est la plus précise qui ait été donnée jusqu'à présent.

2) **Période du ^{32}P .** — Le ^{32}P décroît par émission de rayons β d'énergie 1,71 MeV, non accompagnés de rayons γ . Sa période a été mesurée pour la première fois en 1938 à Palerme, par Cacciapuotti (9), qui a obtenu la valeur $14,30 \pm 0,04$ jours, la source ayant été suivie pendant 3 périodes à la chambre d'ionisation. En 1940, D. Mulder (41) à Amsterdam, trouve $14,07 \pm 0,01$ jours à la suite d'une étude de 15 mois, les mesures ayant été faites par compteur Geiger et par chambres d'ionisation différentielle. En 1948, Klemm (31) obtient, à la chambre d'ionisation, la valeur 14,35 jours. En 1950, Bayly (3) au Canada, confirme la première valeur de Cacciapuotti en donnant $14,30 \pm 0,06$ après une étude par microcalorimétrie différentielle. L'année suivante, Sinclair et

Holloway (51) indiquent la valeur $14,59 \pm 0,03$ jours. Enfin, en 1953, Lockett et Thomas donnent $14,50 \pm 0,04$ jours.

La source de ^{32}P que nous avons utilisée a été préparée par irradiation de ^{32}S à la pile de Saclay. Nous avons pris comme source de compensation un petit étalon de radium de 110 microcuries.

Notre étude a duré 3 jours : 31 séries de mesures ont été faites durant 55 heures.

La droite représentant la fonction $\text{Log } \frac{I_0}{I_0 - i}$ est donnée figure 5.

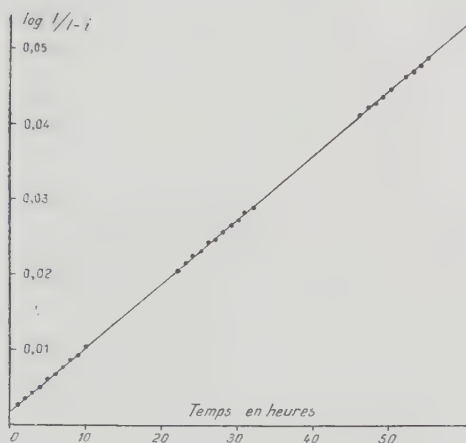


Fig. 5. — Période du ^{32}P .

Nous avons obtenu comme valeur de la période :

$$T = 14,58 \pm 0,03 \text{ jours.}$$

La constante radioactive correspondante est :

$$\lambda = (5,502 \pm 0,010) \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

La précision est de $2 \cdot 10^{-3}$.

Un doute subsiste cependant, quant à la pureté de ^{32}P . En effet, celui-ci formé par une réaction (n, p) à partir de ^{32}S peut à son tour capturer un neutron pour donner ^{33}P . Ce dernier élément décroît avec une période de 25,2 jours en émettant un rayonnement β de 0,26 MeV.

La pureté de ^{32}P étant assurée à mieux que 99 p. 100, il importe de voir quelles seraient les conséquences, dans le cas le plus défavorable, d'une impureté de 1 p. 100 de ^{33}P . Le calcul de la décroissance d'une source contenant N atomes de ^{32}P et $\frac{N}{100}$ atomes de ^{33}P redonne la période

de ^{32}P à $5 \cdot 10^{-4}$ près : la présence de ^{33}P n'altère pratiquement pas la période trouvée si l'on considère le nombre d'atomes.

Mais il faut tenir compte du fait que les β du ^{33}P sont beaucoup moins rapides que les β du ^{32}P : traversant la chambre en fin de trajectoire, ils ioniseront davantage, donc leur rôle risque de ne plus être négligeable. En se plaçant ici encore dans les conditions les plus défavorables, on peut écrire que le rapport des pouvoirs ionisants (18) de ^{33}P à ^{32}P est au maximum de 10, ce qui revient à refaire le calcul ci-dessus en supposant une concentration en ^{33}P égale à 10 p. 100 : la période trouvée diffère alors de la précédente valeur de $3 \cdot 10^{-3}$.

On pourra donc donner comme valeur de la période de ^{32}P :

$$T = 14,58 \pm_{0,08}^{0,03} \text{ jours}$$

ou plus simplement, étant donnée la probabilité d'une valeur trop grande :

$$T = 14,55 \pm 0,06 \text{ jours.}$$

3) *Période du ^7Be* . — Le ^7Be se transforme par capture K en donnant ^7Li ; 88 p. 100 des transitions aboutissent à l'état fondamental, 12 p. 100 à un état excité donnant une émission γ de 480 keV.

La nature de cette transition rend possible une modification de la période radioactive sous l'influence de l'ionisation de l'atome. Dès 1947, R. Daudel (22) et E. Segré (50) calculaient la différence de période théorique entre le béryllium métal et des composés du type $^7\text{BeF}_2$.

Des expériences furent alors entreprises à Paris et à Berkeley pour tenter de mettre en évidence cette différence de période. Au laboratoire Curie, une première expérience faite par Bouchez en 1947 (6) donnait pour la période de ^7Be la valeur $T = 54,3 \pm 0,5$ jours et pour différence de période entre ^7Be et $^7\text{BeF}_2$: $\frac{\Delta T}{T} = (6 \pm 1) \cdot 10^{-3}$.

En 1949, Leininger, Segré et Wiegand (36) obtenaient à Berkeley, les résultats suivants : $T = 52,93 \pm 0,22$ jours et $\frac{\Delta T}{T} = (0,84 \pm 0,10) \cdot 10^{-3}$. L'étude fut reprise en 1953 par Kraushaar, Wilson et Bainbridge (32) qui donnèrent : $T = 53,61 \pm 0,17$ jours et $\frac{\Delta T}{T} = (0,74 \pm 0,05) \cdot 10^{-3}$.

La grande différence subsistant entre les résultats français et étrangers nous incita à reprendre cette étude.

La source de ^7Be a été obtenue en bombardant une cible de graphite extrêmement pur par des protons de 160 MeV au synchro-cyclotron de Harwell. Le ^7Be est produit par la réaction :



La préparation de la source a été effectuée par R. Muxart et R. Mellet de la façon suivante : la cible de graphite contenant le béryllium est brûlée dans un courant d'oxygène ; on recueille le ^7BeO que l'on trans-

forme en ${}^7\text{BeCl}_2$ par action de $\text{ClNa} + \text{ClK}$ à 600° , puis on réduit ${}^7\text{BeCl}_2$ par Mg pour obtenir le béryllium métallique. Une partie de la source a été finalement mise sous forme de ${}^7\text{BeF}_2$ après attaque par $\text{F}_2\text{H}_2\text{NH}_4$, et c'est cette source de ${}^7\text{BeF}_2$ que nous avons utilisée pour mesurer la période de ${}^7\text{Be}$.

La pureté radioactive de ${}^7\text{Be}$ a été vérifiée au photo-tube à scintillation : seule la raie γ de 480 keV a été observée.

Au début des mesures, l'intensité de la source n'était que de 37 microgrammes équivalent de radium ; la source de compensation était un petit étalon de radium de 38 microcuries filtré par 2 mm de plomb.

Il a été fait 35 séries de mesures durant 81 heures (fig. 6).

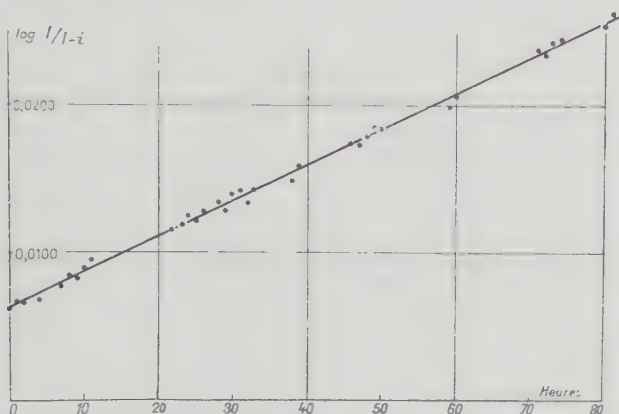


Fig. 6. — Période du ${}^7\text{Be}$.

L'analyse des points obtenus nous a donné comme période :

$$T = 53,0 \pm 0,4 \text{ jours,}$$

soit :

$$\lambda = (1,514 \pm 0,011) \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

Cette valeur est en accord avec la plupart des résultats antérieurs ; malheureusement la trop faible activité de la source n'a pas permis d'obtenir une précision supérieure à $0,75 \cdot 10^{-2}$.

Nous dirons maintenant quelques mots de l'étude faite en collaboration avec R. Bouchez et J. Tobailem, concernant la différence de période entre le béryllium métallique et le fluorure de béryllium.

Les deux sources ${}^7\text{Be}$ et ${}^7\text{BeF}_2$ ont été placées chacune dans une chambre et l'équilibre réalisé, la mesure du déséquilibre progressif devant donner la différence de période cherchée. Mais cette différence

étant très petite (de l'ordre de 10^{-3}) rendait très délicate cette expérience : tout revenait, en effet, à mesurer la décroissance d'une source radioactive dont la période aurait été de l'ordre de 150 ans, par rapport à une source supposée constante ; de plus, la faible activité des sources (200 μ g radium équivalent au début des mesures, 38 à la fin) rendait extrêmement faible la décroissance : de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$ microcuries par jour au début de cette étude, et $0,5 \cdot 10^{-3}$ à la fin.

Le courant d'ionisation différentielle, nul au début des mesures, n'était à la fin de l'expérience que de $7,5 \cdot 10^{-15}$ A. Si l'on se rappelle que le mouvement propre était de l'ordre de 10^{-14} A on comprendra la difficulté d'une telle mesure qui a porté sur des courants toujours inférieurs au mouvement propre : les premiers points en particulier sont assez imprécis, le courant d'ionisation étant à peine supérieur aux fluctuations du mouvement propre.

Dans ces conditions, il était impossible d'employer la méthode précédemment décrite pour mesurer les courants d'ionisation et nous avons dû travailler en grille isolée.

Notre étude a duré 80 jours et nous a conduit au résultat :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda} = (1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}.$$

Cette valeur se rapproche de celle donnée par Leininger, Segré et Wiegand : $(0,84 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$.

DEUXIÈME PARTIE

PRINCIPE DES MESURES CALORIMÉTRIQUES DES SOURCES RADIOACTIVES

CHAPITRE PREMIER

La méthode de microcalorimétrie adiabatique.

On sait, depuis la découverte de P. Curie et A. Laborde, en 1903, que les corps radioactifs possèdent la propriété de dégager spontanément de la chaleur. Il faut rechercher la cause de ce phénomène dans l'absorption par les radioéléments eux-mêmes des rayonnements émis. Ce dégagement de chaleur est faible par rapport à la masse des radioéléments, mais néanmoins considérable eu égard au petit nombre de noyaux intéressés par ces transformations.

La mesure des quantités de chaleur dégagées par les radioéléments permet donc d'obtenir directement la valeur des énergies mises en jeu dans les transitions radioactives.

De nombreux expérimentateurs ont tenté d'évaluer ce débit de chaleur et plusieurs méthodes ont été proposées pour ce genre de mesures. Il a été nécessaire d'adapter les méthodes usuelles de calorimétrie et d'en élaborer de nouvelles en raison des difficultés particulières de telles expériences. Dans la plupart des cas, en effet, les quantités de chaleur dégagées sont très faibles, car les manipulations ne portent que sur de petites quantités de radioéléments.

Nous résumons, ci-après, les différentes méthodes mises en œuvre, en nous référant en particulier à l'examen qu'en a donné M. Sanielevici dans sa thèse (25).

Dès 1903, Pierre Curie et J. Dewar (13) ont construit un calorimètre isotherme à gaz constitué essentiellement par un ballon calorifugé contenant la source radioactive entourée d'hydrogène liquide : le débit de chaleur volatilisait une partie de l'hydrogène et la mesure du volume gazeux permettait d'évaluer avec une bonne précision (de l'ordre de 1 p 100) la chaleur dégagée. La même année, Bunsen construisait un calorimètre isotherme à glace basé sur le même principe (8).

En 1903 encore, Runge et Precht (46) mettaient au point un calorimètre d'un nouveau type formé de deux massifs métalliques reliés par un circuit thermoélectrique débitant dans un galvanomètre. L'un d'eux, contenant la source radioactive, s'échauffait et un équilibre de régime s'établissait entre les deux massifs : le remplacement du corps radioactif par une source de chaleur connue permettait alors d'évaluer le débit de chaleur du corps étudié.

En 1905, Angström (1) et 3 ans plus tard Schwelder et Hess perfectionnaient la méthode en compensant la chaleur produite par la source radioactive dans le premier massif, par le dégagement d'un effet Joule dans le second massif : c'était là déjà une méthode de zéro.

En 1904, Rutherford et Barnes (47) construisaient un calorimètre d'un type différent : deux ballons, l'un contenant la source, étaient reliés par un tube en U, les ballons et le tube contenant une petite quantité de xylène ; l'échauffement de la vapeur de xylène dans le premier ballon déplaçait la colonne liquide dans le tube : le système fonctionnait comme manomètre différentiel.

En 1909, Duane (24) utilise un appareil similaire rempli d'éther, puis met au point une méthode de zéro en absorbant par un effet Peltier la chaleur produite par la source radioactive.

En 1917, Wertenstein (61) emploie deux vases Dewar, l'un contenant la source, et mesure l'élévation de température du premier par rapport au second au moyen d'un circuit thermoélectrique.

En 1923, Tian (55) construit un calorimètre comportant une cellule reliée à une enceinte isotherme par un grand nombre de couples et

compense par un effet Peltier l'échauffement de la cellule, méthode qui sera reprise plus tard en France et aux U. S. A.

En 1924, Yovanovitch (63) reprend au laboratoire Curie un calorimètre, type Runge et Precht, mais maintient constante la température du second massif au moyen d'un effet Peltier.

En 1927, enfin, Ellis et Wooster, en Angleterre (25), L. Meitner et Ortman, en Allemagne (38) donnent la valeur de l'énergie moyenne du RaE en ayant utilisé un calorimètre du même type.

Mais à partir de 1920, c'est principalement la méthode de micro-calorimétrie adiabatique non isotherme qui est mise en œuvre. Cette méthode avait été décrite pour la première fois par Th. Richards en 1905 (45) et expérimentée par E. Lange (32) sur des problèmes n'intéressant pas la radioactivité. Elle consiste, essentiellement, à suivre constamment la température du calorimètre en élevant progressivement celle du milieu ambiant.

En 1921, Swietoslawski (52) met au point cette méthode en l'adaptant aux problèmes particuliers des mesures radioactives. De nombreux travaux sont alors publiés jusqu'à cette guerre par lui-même et ses collaborateurs, Dorabalska et Zlotowski (23) (53) (54) (64); ce dernier auteur introduit la méthode en France, au laboratoire Curie.

La méthode est reprise et perfectionnée en 1936 par Sanielevici (49) qui étudie un procédé de dosage calorimétrique des dérivés du radium et de l'actinium; il aborde les mesures absolues en donnant l'énergie moyenne des rayons β de l'actinium B et la valeur du curie de polonium (Nombre N de désintégrations par seconde).

Deux ans plus tard, Winand (62), au laboratoire Curie, modifie la méthode en utilisant des calorimètres dont l'épaisseur varie localement et qui présentent, de ce fait, des différences de températures superficielles: il étudie l'évolution des dérivés du thorium, mésothorium et dépôt actif, et mesure le débit absolu de diverses sources, en particulier l'ionium et le polonium.

En 1939, M. Lecoin et Zlotowski (33) entreprennent une nouvelle détermination de l'énergie moyenne du RaE. En 1947, M. Lecoin (34) publie le résultat d'une étude concernant un éventuel rayonnement pénétrant du RaE. Deux ans plus tard, M. Lecoin, M. Perrey et A. Pompei (35) déterminent la valeur du milligramme équivalent de l'actinium.

Depuis cette guerre, de nombreux travaux ont été entrepris aux Etats-Unis d'Amérique et au Canada, utilisant la calorimétrie; la méthode employée est, en général, celle de Tian, qui fait intervenir un dispositif différentiel avec absorption par effet Peltier de la chaleur produite.

En France, le professeur Calvet, à Marseille (10), a repris la méthode de Tian et mis au point un calorimètre différentiel à compensation par effet Peltier: cet appareil a permis d'étudier l'évolution rapide des

phénomènes thermiques avec une précision très grande dans les domaines physico-chimiques et biologiques.

Néanmoins, cette méthode nous a semblé difficilement applicable pour des mesures de radioactivité : tout d'abord parce que l'on ignore la signification de l'effet Peltier en milieu fortement ionisé ; ensuite parce qu'il est difficile de définir, dans cette méthode, une masse calorimétrique, quantité que l'on obtient, en fait, par la mesure d'un écalon de radium.

Il apparaît donc que la méthode adiabatique utilisée avant la guerre au laboratoire Curie est la meilleure pour les mesures de radioactivité, c'est pourquoi nous l'avons préférée à toutes autres : cette méthode est, en effet, la seule qui fasse intervenir la mesure d'une élévation de température, les autres méthodes étant basées sur la mesure d'une énergie de compensation (Joule, Peltier, etc...), mesure dont l'interprétation est souvent des plus délicates.

Nous avons donc remonté une installation de microcalorimétrie en nous servant, au début de nos travaux, d'une partie du matériel qui avait été utilisé avant la guerre par L. Winand au laboratoire Curie. Nous avons ensuite été amené à améliorer peu à peu cette installation ; nous avons modifié profondément la pratique des mesures, jusqu'alors longues et délicates, et nous avons mis au point un dispositif nouveau de compensation automatique.

Nous donnerons tout d'abord quelques indications complémentaires sur le principe de la méthode de microcalorimétrie adiabatique et le rôle de l'appareillage utilisé.

..

Les sources radioactives dont on veut mesurer le débit de chaleur sont placées dans un calorimètre hermétiquement clos dans les parois duquel sont absorbés les rayonnements émis. Ce calorimètre, suspendu dans une enceinte métallique par des fils très fins, est en principe isolé au point de vue thermique : les échanges de chaleur sont très petits et deviennent pratiquement nuls lorsque le calorimètre et l'enceinte sont à des températures voisines de quelques millièmes de degré. La manipulation consiste donc essentiellement à suivre du plus près possible l'évolution thermique du calorimètre. Dans ce but, l'enceinte est plongée dans un bain d'eau d'une centaine de litres dont la température peut être augmentée progressivement par injections de petites quantités d'eau chaude. Dans ces conditions, l'élévation de température du bain, mesurée par un thermomètre au centième ou au millième de degré, est égale à l'élévation de température du calorimètre (fig. 7).

La différence de température entre le bain et le calorimètre est décelée

à chaque instant au moyen d'un couple thermo-électrique en cuivre-constantan relié à un galvanomètre à haute sensibilité permettant d'apprécier 10^{-4} degré. Le déplacement du spot du galvanomètre dans un sens ou dans l'autre indique par conséquent une surchauffe soit du bain, soit du calorimètre ; il s'agit de maintenir constamment le spot très près du zéro de l'échelle en agissant sur la température du bain.

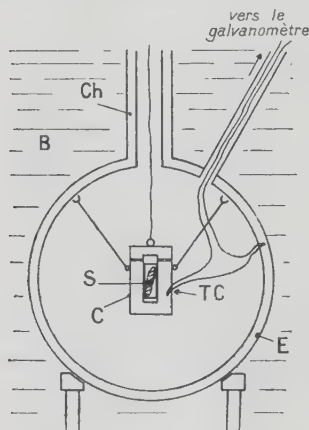


Fig. 7.

Schéma d'une enceinte calorimétrique.

- B : Bain d'une centaine de litres.
- E : Enceinte en cuivre rouge.
- Ch : Cheminée.
- C : Calorimètre.
- S : Source radio-active.
- TC : Thermo-couple.

CHAPITRE II

Description de l'appareillage.

Nous donnerons d'abord quelques détails sur l'appareillage calorimétrique que nous avons fait construire au laboratoire Curie. Cet appareillage a été conçu essentiellement pour pouvoir être utilisé avec le dispositif de compensation automatique dont nous parlerons plus loin.

1) **Le calorimètre.** — Suivant l'élévation de température que l'on désire obtenir en un temps donné, on est amené à choisir un calorimètre dont le poids peut être compris entre quelques grammes et quelques kilogrammes.

a) **NATURE DU CALORIMÈTRE.** — On choisit pour construire le calorimètre un métal devant répondre à plusieurs conditions :

— sa chaleur spécifique doit être faible, de façon à obtenir une élévation de température plus considérable pour une même masse ;

— autant que possible, il doit être chimiquement inactif dans l'air, ce qui exclut tous les métaux pouvant être le siège de réactions d'oxydation, hydratation, sulfuration, etc., de manière à éviter un échauffement spontané du calorimètre par voie chimique ;

— il doit se présenter sous une forme allotropique stable et ne pas risquer de déformation pour les mêmes raisons que ci-dessus ;

— son numéro atomique Z doit, autant que possible, être assez élevé afin que la proportion de rayons γ absorbés soit plus considérable, pour une épaisseur donnée. Ceci conduit à utiliser des métaux lourds, mais ceux-ci présentent l'avantage d'avoir une chaleur spécifique faible et, par conséquent, une bonne conductibilité thermique : ce dernier point permet d'éviter que le calorimètre présente des différences locales de température à sa surface.

On a utilisé l'or pour la construction des petits calorimètres, le plomb pour les calorimètres de plus grande masse. Dans ce dernier cas, il est nécessaire de recuire le calorimètre 48 heures dans un four à 150° de façon à hâter la carbonatation superficielle ; il faut néanmoins rester assez loin du point de fusion pour éviter toute déformation.

b) FORME DU CALORIMÈTRE. — Pour obtenir une forte élévation de température à partir d'une source donnée, il est nécessaire de construire un calorimètre de masse la plus faible possible. Cette condition nous a conduit à utiliser des calorimètres de forme cylindrique qui présentent une cavité axiale pouvant contenir les sources. Cette cavité est refermée à la partie supérieure par un bouchon taraudé qui reste en bon contact thermique avec le calorimètre.

Sur le pourtour du calorimètre, à la partie supérieure, sont vissés trois ou quatre anneaux du cuivre de très petite dimension. Le calorimètre est suspendu dans l'enceinte par des fils de soie très fins, pratiquement non conducteurs de la chaleur, aboutissant à ces anneaux.

Lorsque la source est une petite ampoule scellée, en verre, ce qui est généralement le cas, on utilise un calorimètre de forme allongée. La source se place dans une gaine de laiton qui se visse dans le bouchon du calorimètre. Lorsque la source est, au contraire, obtenue par dépôt sur une feuille métallique, on utilise un

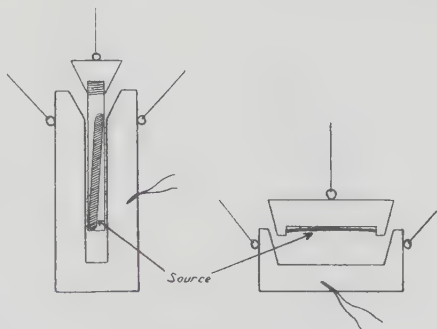


Fig. 8. — Différents types de calorimètres, représentés couvercle soulevé.

calorimètre plat, dont le bouchon présente une cavité circulaire : la source est alors coincée à l'intérieur du bouchon.

Ce bouchon est relié, dans les deux cas, avec l'extrémité supérieure de la cheminée de l'enceinte par un fil de soie très fin. On peut ainsi placer et enlever les sources dans le calorimètre sans avoir à démonter quoi que ce soit.

Les mesures sont parfaitement reproductibles dans le premier cas (source scellée). Dans le second cas (dépôt sur feuille métallique), il faut prendre de grandes précautions pour ne pas disperser la source, car il est impossible de couvrir celle-ci, la présence de matière organique dans le calorimètre étant absolument exclue.

L'épaisseur du calorimètre est déterminée suivant la proportion de rayons γ que l'on désire absorber. Dans le cas du radium par exemple, on prendra un calorimètre de 5 mm d'épaisseur si l'on désire absorber 50 p. 100 du rayonnement γ .

2) *L'enceinte*. — Nous avons étudié deux types d'enceintes, l'une cylindrique, l'autre sphérique, dont le diamètre intérieur varie de 15 à 20 cm. Chacune d'elles porte à la partie supérieure une « cheminée », tube vertical de 30 mm de diamètre, dépassant le niveau de l'eau de quelques centimètres et par lequel on peut descendre les sources dans le calorimètre ; cette cheminée est hermétiquement close à la partie supérieure de façon à éviter toute rentrée d'humidité dont la condensation sur le calorimètre amènerait des dégagements de chaleur incohérents. Un second tube de plus petit diamètre permet d'amener les fils des couples du système calorimètre-enceinte jusqu'au galvanomètre.

Les enceintes ont été construites en cuivre rouge, métal qui présente l'avantage d'être bon conducteur de la chaleur, de n'être pratiquement pas attaqué par l'eau courante et qui, de plus, forme un bon blindage électrostatique pour les couples.

Dans les parois des enceintes sont soudés de petits tubes de cuivre permettant le logement des couples et débordant de quelques millimètres vers l'extérieur de façon que les couples suivent rapidement les variations de température du bain.

3) *Le bain*. — L'enceinte est plongée dans une cuve d'une centaine de litres remplie d'eau. Cette cuve, de forme cubique, est en cuivre rouge, mise à la masse de même que l'enceinte et entourée d'un revêtement de 3 cm de mousse d'ébonite. Un isolement thermique soigné est tout à fait inutile : les échanges de chaleur possibles entre le bain et l'extérieur sont compensés par un apport d'eau chaude plus considérable sans autre difficulté. Au fond de la cuve, deux tubes circulaires percés de nombreux trous et reliés à l'extérieur par deux tuyaux en caoutchouc permettent l'introduction de l'eau chaude et de l'air comprimé.

L'eau chaude est introduite dans le bain au moyen d'une électro-vanne dont le débit est réglé par un robinet à pointeau. Un chauffe-eau permet d'obtenir de l'eau à température constante, condition essentielle d'un fonctionnement régulier de l'appareillage. L'expérience a montré qu'il est préférable d'utiliser de l'eau tiède (40° à 45° maximum) pour obtenir un mélange rapide à l'intérieur du bain.

L'équilibre thermique du bain est assuré par un brassage constant au moyen d'air comprimé saturé d'eau. L'air comprimé est tout d'abord détendu à la pression de 200 ou 300 g, puis traverse une marmite pleine d'eau, hermétiquement close, jouant le rôle de saturateur. Le refroidissement de l'eau provoqué par la détente peut être compensé par un réchauffement du saturateur au moyen d'une résistance électrique.

4) *Les couples.* — Chaque calorimètre porte, suivant ses dimensions, un ou deux couples : un seul est en service, le second ne sert qu'à vérifier les données du premier. Les fils reliant le galvanomètre d'une part, à l'enceinte ou au calorimètre d'autre part, sont en cuivre rouge très fin, le fil reliant le calorimètre à l'enceinte est en constantan très fin.

Nous avons employé des fils de diamètre 0,2 ou 0,12 mm. Il est nécessaire d'utiliser des fils longs et fins de façon à limiter les échanges de chaleur par conductibilité, et aussi afin d'augmenter la résistance électrique du circuit et se rapprocher de la résistance critique du galvanomètre. La résistance de chaque couple est de l'ordre d'une dizaine d'ohms, nettement inférieure à la résistance critique.

Le couple situé sur le calorimètre n'est pas isolé électriquement : il est logé dans une petite encoche et soudé avec une très petite quantité d'alliage à l'indium, fusible à basse température.

Le couple situé sur l'enceinte doit être isolé électriquement. Le problème est alors d'avoir un bon isolement électrique et une bonne conductibilité thermique afin que les variations de température de l'enceinte soient rapidement détectées par le couple. Nous avons utilisé dans ce but des tubes de verre à parois très minces (0,1 mm), de 1,5 à 2 mm de diamètre à l'intérieur desquels on loge les deux fils torsadés sur lesquels on coule l'alliage fusible. La gaine de verre est ensuite logée dans une cavité préparée dans l'enceinte.

Les fils des couples sont isolés thermiquement à la sortie de l'enceinte et blindés jusqu'à la cage du galvanomètre.

La f. e. m. du couple cuivre-constantan est de $40 \mu\text{V}/\text{degré}$, c'est-à-dire que le galvanomètre sera soumis à une f. e. m. ne dépassant guère 4×10^{-8} V puisque la différence de température entre le calorimètre et l'enceinte reste constamment inférieure au millième de degré.

Dans ce qui suit, nous appellerons sensibilité S d'un couple le rapport :

$$S = \frac{\delta}{\Delta\theta},$$

δ étant l'élongation du spot obtenue pour une différence de température calorimètre-enceinte $\Delta\theta = 1$ millidegré. Dans les conditions où nous nous sommes placé, la sensibilité des couples variait, suivant les cas, de 4 à 6 mm par millidegré.

D'autres couples (nickel-constantan) permettraient d'obtenir une sensibilité plus grande, mais il est indispensable d'utiliser uniquement du cuivre dans le circuit extérieur, afin d'éviter toute f. e. m. parasite au contact des bornes de cuivre du galvanomètre.

5) **Le galvanomètre.** — Le galvanomètre est un Kipp modèle Zernike ZC, à haute sensibilité en volts. Une déviation de 1 mm du spot sur l'échelle placée à 2 m correspond à une différence de température de $2 \cdot 10^{-4}$ degrés entre le calorimètre et l'enceinte, soit à une différence de potentiel de l'ordre de 10^{-8} V.

Ce galvanomètre est situé à proximité immédiate de la cuve, au flanc d'un pilier en béton s'enfonçant à une dizaine de mètres sous terre et théoriquement insensible aux vibrations extérieures. Il repose au fond d'une boîte cubique en cuivre rouge, aux parois de 5 mm d'épaisseur, assurant un blindage électrostatique convenable, et, par son poids, une bonne stabilité mécanique; cette boîte est placée elle-même dans une seconde boîte en mousse de polyvinyle de 3 cm d'épaisseur jouant le rôle d'isolant thermique; celui-ci est enfin entouré d'un grillage en fer étamé aux mailles serrées assurant une protection magnétique suffisante.

Chaque couple peut être branché sur le galvanomètre par un contacteur placé dans la même enceinte métallique que le galvanomètre afin que sa température reste constante. Un dispositif de sécurité, dont nous parlerons plus loin, permet de mettre immédiatement le galvanomètre en court-circuit en cas de dérangement de la marche automatique ou en cas de manque de courant.

Nous discuterons, plus loin, du fonctionnement du galvanomètre.

6) **Les thermomètres.** — Pour évaluer la température du bain, on a employé des thermomètres à mercure type Beckmann gradués en centièmes ou en millièmes de degré centigrade. Ces thermomètres comportent un réservoir supérieur et peuvent être réglés à volonté pour fonctionner à une température quelconque. Ils sont surmontés d'un trembleur dont la manœuvre, avant chaque lecture, permet au mercure de monter dans la colonne malgré les forces de capillarité.

L'étendue de l'échelle du thermomètre au millième est de 10° ; les graduations au millième sont espacées de 0,3 mm; on peut apprécier facilement à la loupe la demi-division. L'échelle du thermomètre au centième s'étend sur 6° , les graduations au centième sont espacées de 0,375 mm; on peut apprécier, avec un entraînement suffisant, le dixième de division, car la colonne de mercure plus large, que dans le

thermomètre au millième, reste plus stable pendant et après la manœuvre du trembleur.

Pratiquement, on obtient la même précision avec ces deux types de thermomètre, mais l'emploi du thermomètre au centième est beaucoup plus délicat pour les faibles élévations de température, dont la mesure exige une grande précision.

7) *Conditionnement de la pièce.* — Notre installation est placée dans une pièce en sous-sol dont la température est maintenue constante au dixième de degré. On a employé en ce but un bilame à dilatation assurant la mise en route d'un radiateur soufflant, par l'intermédiaire d'un relais à mercure.

Pour une température de 18° , la teneur en vapeur d'eau de l'air ambiant a pu être maintenue en général aux environs de 50 p. 100 ; la proportion de CO_2 n'excédait pas un millième. On s'est attaché à maintenir à peu près constante la composition de l'atmosphère afin d'éviter l'entrée de vapeur d'eau ou de gaz carbonique dans l'enceinte au moment où l'on descend les sources dans le calorimètre.

CHAPITRE III

Dispositif de compensation automatique.

1) *Principe de la méthode.* — Comme nous l'avons dit plus haut, la méthode de microcalorimétrie adiabatique consiste à augmenter progressivement la température du bain de façon à suivre du plus près possible l'augmentation de température du calorimètre. La différence de température entre le bain et le calorimètre doit être maintenue très petite de manière que les échanges de chaleur soient nuls, ou tout au moins suffisamment petits pour être considérés comme tels. La manipulation consiste donc à maintenir au zéro, ou très près du zéro, le spot du galvanomètre pendant toute la durée de l'expérience.

Les divers auteurs ayant utilisé cette méthode parvenaient à ce résultat en injectant dans le bain de très petites quantités d'eau chaude au moyen d'un robinet manœuvré à la main. Nous-même avons employé ce dispositif au début de nos travaux.

Mais une telle pratique faisant intervenir une tuyauterie d'eau à température imprécise, un robinet répondant avec un retard variable, demandait une grande habileté et ne pouvait être poursuivie pendant plus de quelques heures en raison de la fatigue de l'opérateur ; la précision des mesures dépendait de la plus ou moins bonne compensation effectuée par l'expérimentateur et du temps trop restreint des mesures.

C'est pourquoi nous avons perfectionné cette méthode par la mise au point d'un dispositif de compensation automatique.

Ce dispositif est basé sur l'emploi d'une cellule photo-résistante placée près du zéro de l'échelle du galvanomètre. En l'absence de toute compensation, le calorimètre s'échauffe seul, le spot dérive donc plus ou moins rapidement sur l'échelle suivant l'intensité de la source radio-active. Au moment où il entre dans le champ de la cellule, l'éclairement produit donne naissance à un courant de quelques dizaines de microampères suffisant pour faire basculer un microrelais ; celui-ci fait basculer à son tour une série de relais à forte intensité mettant en marche une minuterie qui actionne l'ouverture d'une électro-vanne pendant un temps rigoureusement déterminé : l'injection d'eau dans le bain doit y provoquer une très légère surchauffe de façon que le spot retourne en arrière et quitte le champ de la cellule. L'appareil est alors prêt pour un nouveau cycle.

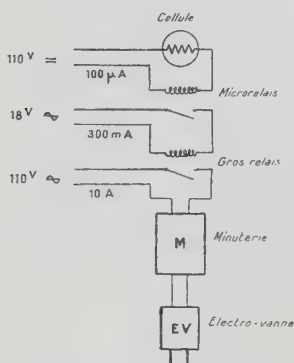


Fig. 9. — Principe du montage de compensation automatique.

qu'au bout de 10 ou 15 secondes au bout desquelles les couples sont le siège d'une f. e. m. ; il faut ensuite compter sur l'inertie du cadre du galvanomètre qui ne commencera à tourner que 10 ou 15 secondes plus tard ; or, pendant ces 20 ou 30 secondes, le spot continue à avancer et peut quitter le champ de la cellule. Ce simple exemple montre un aspect des différents problèmes qui se sont posés.

La figure 9 donne le principe du montage.

2) **Description du montage.** — a) **LES CELLULES.** — Ce sont des photo-résistances au germanium. Elles se présentent sous forme de cylindres aplatis de 17 mm de diamètre, la surface active occupant 200 mm². Ces cellules sont alimentées sous 110 V continu. Leur résistance d'obscurité (0,1 lux) varie de 10⁷ à 10⁶ ohms suivant les types ; cette résistance passe respectivement à 10⁶ et 10⁵ ohms lorsque le spot passe dans le champ de la cellule.

Ces photo-résistances ont le mérite d'être beaucoup plus sensibles que les cellules photo-émissives pour une même surface active. Elles présentent, par contre, de graves défauts d'instabilité et souvent un accroissement de sensibilité et de bruit de fond en vieillissant. En

pratique, elles doivent être changées après 6 mois d'utilisation journalière.

Chaque cellule est placée au fond d'un tube noirci de 8 cm de long afin de diminuer son courant d'obscurité.

Trois cellules sont installées côte à côte au fond de trois tubes parallèles placés horizontalement, et dont les axes coïncident avec le faisceau lumineux réfléchi par le galvanomètre. Ces trois tubes sont montés sur un même support pouvant coulisser sur une crémaillère horizontale sur

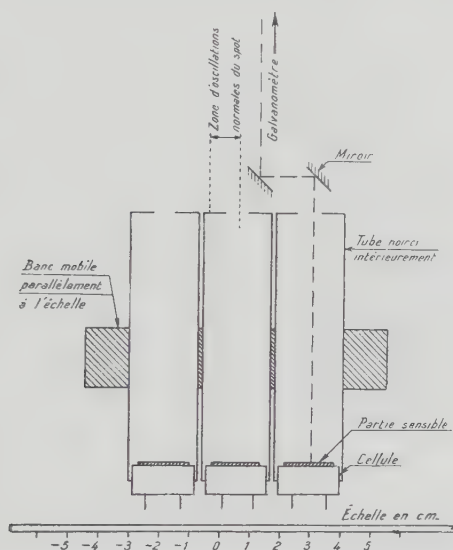


Fig. 10. — Schéma du porte-cellules, vu en plan.

laquelle est fixée rigidement l'échelle du galvanomètre : cette disposition permet de déplacer les cellules par rapport au zéro de l'échelle. Des repères placés sur la crémaillère indiquent la position de la cellule centrale par rapport au zéro.

D'autre part, cette crémaillère est mobile horizontalement, ce qui permet de ramener le zéro de l'échelle sur le spot, sans modifier la position des cellules.

Enfin, tout ce bloc est mobile dans un plan vertical. On règle sa position de manière que le spot couvre complètement la cellule mais dépasse suffisamment en hauteur pour que sa position puisse être repérée à chaque instant sur l'échelle.

Des trois cellules utilisées, seule fonctionne, en principe, la cellule centrale qui commande le déclenchement de l'électro-vanne ; le spot,

oscillant de quelques millimètres autour de cette cellule, ne pénètre pas, en principe, dans le champ des deux autres. Si, accidentellement, l'une de ces cellules se trouve éclairée au cours d'une elongation anormalement grande du spot, une sonnerie se déclenche, indiquant une surchauffe d'un côté ou de l'autre, ce qui peut demander une intervention manuelle.

b) LES RELAIS. — Le courant débité dans les cellules lorsqu'elles sont éclairées varie de 0,1 à 1 mA suivant les types de cellules. On envoie ce courant dans un microrelais R_1 par l'intermédiaire d'un potentiomètre de réglage.

Ce microrelais ferme un contact basse tension qui alimente la bobine d'un gros relais R_2 . Ce dernier, par l'intermédiaire des minuteries, permet le déclenchement de l'électro-vanne.

Il a été nécessaire d'utiliser deux étages de relais en raison de la grande différence d'intensité qui entre en jeu : 100 μ A dans la cellule, 10 A dans l'électro-vanne. On a systématiquement éliminé toute commande par lampes, thyatron, etc., en raison des répercussions possibles sur le galvanomètre.

Un dispositif d'auto-alimentation du gros relais a été rendu indispensable par la marche parfois saccadée du spot qui risquait de déclencher plusieurs fois l'électro-vanne en oscillant à l'entrée du champ de la cellule : le gros relais est bloqué fermé à la première impulsion du microrelais et ne retombe que lorsque le spot quitte complètement le champ de la cellule ce qui provoque le basculement du micro-relais.

c) LES MINUTERIES. — Trois minuteries sont utilisées : seule la minuterie M_1 règle le temps d'ouverture de l'électro-vanne.

La minuterie M_1 comporte un moteur qui démarre à la fermeture du gros relais et qui alimente pendant un temps déterminé le circuit de l'électro-vanne. Ce temps peut être réglé d'une demi-seconde à 1 seconde $1/2$, au soixantième de seconde près. Ce réglage, fait avant le début de chaque mesure, est assez délicat : un temps d'ouverture trop grand provoquera une surchauffe exagérée du bain ; un temps trop petit n'aurait pas une action suffisante pour faire rétrograder le spot.

L'expérience a montré que la quantité de chaleur apportée par l'eau chaude n'est pas proportionnelle au temps d'ouverture de l'électro-vanne, bien que la quantité d'eau débitée soit proportionnelle à ce temps d'ouverture. Cela peut s'expliquer par le fait qu'au moment de l'ouverture de l'électro-vanne, l'eau chaude doit d'abord chasser l'eau froide, contenue dans le tuyau et le serpent, avant de pénétrer dans le bain. On peut estimer qu'une demi-seconde au moins est perdue dans ces conditions : on voit donc que si l'on a deux coups accidentellement

rapprochés de l'électro-vanne, la surchauffe obtenue ne sera pas deux fois plus grande qu'avec un seul coup mais beaucoup plus considérable.

Les deux autres minuteriers ne servent que comme sécurité.

La minuterie M_2 , réglable de 10 à 65 secondes, est mise en marche par la minuterie M_1 , et interdit pendant sa temporisation un nouveau

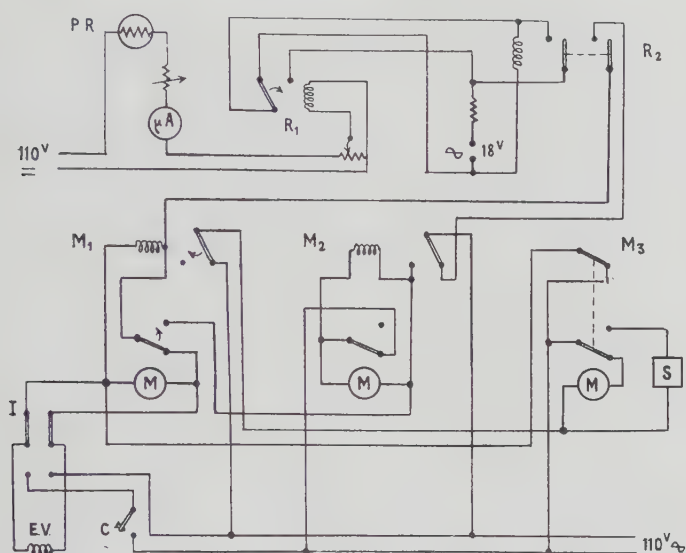


Fig. 11. — Détails du montage de compensation automatique.

PR : Cellule photo-résistante.

μR : Microampèremètre.

R_1 : Microrelais.

R_2 : Gros relais.

$M_1 M_2 M_3$: Minuteriers.

Les inverseurs supérieurs basculent en fin de temporisation de la minuterie et reviennent à leur position primitive à la coupure du courant.

Les inverseurs inférieurs basculent lorsque la minuterie est mise sous tension (début de temporisation) et reviennent à leur position primitive à la coupure du courant.

I : Inverseur : plots du haut, marche automatique ; plots du bas, marche manuelle (démarrage).

C : Clé commandant l'ouverture de l'électro-vanne en marche manuelle.

EV : Electro-vanne.

S : Circuit de secours : sonnerie d'alarme ou mise en court-circuit du galvanomètre.

Tous les relais sont figurés en position courant coupé.

départ de M_1 . Elle a pour but d'empêcher les coups d'électro-vanne rapprochés et d'éviter ainsi des surchauffes du bain : elle est tout particulièrement utile pour la mesure des très fortes sources pour lesquelles l'échauffement rapide du calorimètre donne au spot une vitesse importante ; en ce cas, il peut arriver que le spot animé d'un mouvement rapide sorte du champ de la cellule qu'il actionnerait de nouveau à son retour, provoquant une surchauffe importante. La minuterie M_2 interdit à ce moment un nouveau déclenchement.

La minuterie M_3 , réglable de 30 secondes à 13 minutes, est mise en marche en fin de temporisation de M_2 et retombe à zéro au démarrage de M_1 . Elle n'arrive donc en fin de temporisation que si M_1 et, par conséquent, l'électro-vanne cessent de fonctionner : pareille circonstance peut se produire, par exemple, en cas de rupture du filament de la lampe du spot qui n'actionne plus la cellule ; le calorimètre continuerait alors à s'échauffer seul, créant une f. e. m. de plus en plus consi-

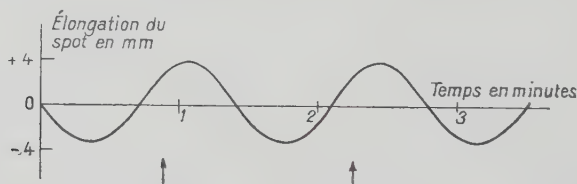


Fig. 12. — Oscillations du galvanomètre. Les flèches indiquent le déclenchement de l'électro-vanne au cours de chaque cycle.

dérable qui pourrait finir par détériorer le galvanomètre. Pour éviter pareil accident, la minuterie M_3 , arrivée en fin de temporisation, fait basculer un relais qui, par l'intermédiaire d'un électro-aimant, agit sur le contacteur du galvanomètre et met celui-ci en court-circuit.

La figure 11 donne les détails du montage.

On obtient avec ce dispositif une suite ininterrompue de cycles durant 1 à 2 minutes et comportant alternativement surchauffe du calorimètre et surchauffe du bain, ce qui se traduit par une oscillation forcée du spot du galvanomètre de part et d'autre du zéro. La courbe figure 12 donne une idée du déplacement du spot sur l'échelle en fonction du temps. Le dispositif ainsi conçu peut fonctionner sans surveillance pendant un temps indéfini.

3) **Conditions de fonctionnement du galvanomètre. Théorie de l'appareil.** — Le galvanomètre utilisé est, comme nous l'avons dit plus haut, un Kipp modèle Zernike ZC à haute sensibilité en volts. Son cadre, de faible inertie, comporte un petit nombre de tours, il est suspendu par deux fils d'or dans un champ magnétique relativement important. Sa

résistance est de 35 ohms. La période de ses oscillations propres a été trouvée égale à 6,5 secondes : le décroissement logarithmique est de l'ordre de 1,4.

Le champ magnétique de l'aimant peut être modifié par un shunt, ce qui permet de faire varier les caractéristiques essentielles de l'appareil. En shunt ouvert (champ maximum) la résistance critique est 400 ohms, la sensibilité (en régime critique) atteint $4 \cdot 10^7$ mm/V à 2 m. Au fur et à mesure qu'on ferme le shunt, la résistance critique diminue progressivement pour atteindre 250 ohms ; elle passe brusquement à une valeur faible, de l'ordre de quelques ohms, au moment où le shunt vient au collage : la sensibilité tombe alors à $1,3 \cdot 10^7$ mm/V.

Malgré la faible résistance des couples (10 ohms), nous avons utilisé le galvanomètre en shunt ouvert afin d'avoir la sensibilité maximum. Il était de toute manière exclu de travailler en shunt fermé, le galvanomètre fonctionnant alors en régime périodique : d'autre part, la variation brusque de résistance critique au décollage du shunt obligeait à se placer assez loin du régime critique.

Nous avons augmenté dans la mesure du possible la résistance des couples afin de nous rapprocher un peu de la résistance critique. Dans les conditions d'utilisation, la sensibilité était de 10^8 mm/V.

Nous étudierons maintenant le fonctionnement du galvanomètre.

Les couples reliés au galvanomètre sont soumis à plusieurs f. e. m. provenant :

- de l'échauffement continu du calorimètre provoqué par la source radio-active ;
- du refroidissement continu du bain causé par la détente de l'air comprimé, même saturé, et par l'évaporation lente de l'eau ;
- du réchauffement périodique du bain par l'électro-vanne.

La f. e. m. résultante a théoriquement la forme d'une courbe en dents de scie ; mais il faut tenir compte du fait que la diffusion de l'eau chaude dans le bain n'est pas instantanée, et que la transmission de la chaleur jusqu'au couple demande aussi un certain temps. On peut, dans ces conditions, admettre que le galvanomètre est soumis à un courant périodique grossièrement sinusoïdal de période T, de pulsation ω .

L'équation du galvanomètre s'écrit alors, δ étant la déviation du spot :

$$I \frac{d^2\delta}{dt^2} + F \frac{d\delta}{dt} + C\delta = Ki \cos \omega t. \quad (1)$$

La solution de cette équation est la somme de l'intégrale générale de l'équation sans second membre et d'une intégrale particulière de l'équation avec second membre. Etant donné que nous sommes en régime apériodique, nous avons :

$$F^2 - 4IC > 0.$$

L'intégrale générale est de la forme :

$$\delta = A_1 e^{-r_1 t} + A_2 e^{-r_2 t},$$

r_1 et r_2 étant racines de l'équation caractéristique de l'équation (1).

L'intégrale particulière de l'équation (1) avec second membre peut s'écrire :

$$\delta = \delta_0 \cos (\omega t - \varphi).$$

Mais la durée du mouvement apériodique déterminée par l'intégrale générale est petite devant la période du courant appliqué au galvanomètre. L'expérience montre, en effet, que la période du cycle ne descend jamais au-dessous de 1 minute et reste, en général, de l'ordre de 90 à 100 secondes. Dans ces conditions, l'intégrale générale de l'équation (1) s'annule assez rapidement et il s'établit des oscillations forcées du système ayant même pulsation ω que le courant i . La solution de l'équation (1) se réduit donc à :

$$\delta = \delta_0 \cos (\omega t - \varphi). \quad (2)$$

Le galvanomètre va répondre avec un retard de phase φ que l'on peut obtenir en calculant :

$$\frac{d\delta}{dt} = \omega \delta_0 \sin (\omega t - \varphi),$$

$$\frac{d^2\delta}{dt^2} = -\omega^2 \delta_0 \cos (\omega t - \varphi),$$

et en reportant dans l'équation (1), soit :

$$-\omega^2 I \delta_0 \cos (\omega t - \varphi) + \omega F \delta_0 \sin (\omega t - \varphi) + C \delta_0 \cos (\omega t - \varphi) = K i \cos (\omega t - \varphi).$$

Cette équation doit être vérifiée pour toute valeur de t . On obtient deux relations en annulant les termes en sin ou les termes en cos, ce qui donne finalement :

$$\operatorname{tg} \varphi = \frac{F\omega}{C - I\omega^2}.$$

Le retard de phase est proportionnel au coefficient d'amortissement F . On peut le diminuer en augmentant la résistance R des couples puisque :

$$F = f + \frac{\Phi^2}{R}$$

et l'expérience montre, en effet, que l'on a gagné quelques secondes dans la réponse du galvanomètre en substituant des couples de 10 ohms aux couples de 5 ohms utilisés au début des mesures.

Toutefois, ce déphasage reste constant. La courbe de réponse du galvanomètre est donc constamment décalée, suivant l'axe des temps, de la courbe représentant la différence de température entre le calorimètre et l'enceinte. Ces deux courbes restent donc identiques : leur surface

totale est nulle dans les mêmes conditions et ce que nous avons dit au chapitre précédent sur la position de la cellule par rapport au 0 reste donc valable.

Il est toutefois bon de laisser le système évoluer pendant quelques cycles avant de commencer les mesures, afin que le régime de fonctionnement du galvanomètre soit bien établi; mais cette condition est déjà remplie par la nécessité où l'on est d'attendre l'établissement du régime thermique du système pour faire la première lecture du thermomètre.

CHAPITRE IV

Pratique des mesures.

Suivant l'intensité de la source à mesurer, on choisit un calorimètre de masse appropriée afin d'obtenir une élévation de température horaire suffisante. Nous avons été amené à fixer à demeure chaque calorimètre dans une enceinte déterminée, le changement du bloc-enceinte calorimètre étant plus rapide que la fixation d'un calorimètre dans son enceinte. Cette manière de procéder permet également de se retrouver toujours dans des conditions strictement identiques, la position d'un calorimètre dans son enceinte restant toujours la même ainsi que les contacts des couples.

L'enceinte étant donc placée dans le bain, on enlève le couvercle du calorimètre qui est relié, comme nous l'avons dit précédemment, à la partie supérieure de la cheminée par un fil de soie. On place la source dans la gaine vissée au couvercle, on redescend le tout dans le calorimètre par la cheminée et l'on s'assure visuellement que le contact thermique est convenable entre le calorimètre et son couvercle. Après quoi, on referme hermétiquement la cheminée. Celle-ci ne doit rester ouverte qu'un minimum de temps de manière à éviter l'introduction accidentelle de vapeur d'eau et de gaz carbonique dans l'enceinte.

On se fixe ensuite l'intervalle de température $\Theta_2 - \Theta_1$ sur lequel portera la mesure, intervalle qui dépend de l'intensité de la source et de la précision cherchée, c'est-à-dire au total du temps de mesure. Cet intervalle sera toujours le même lorsque l'on voudra comparer des sources entre elles. En effet, en opérant toujours entre deux mêmes graduations de l'échelle, on élimine toutes les corrections du calibrage de la colonne thermométrique; c'est là un point très important de notre méthode de mesure. *La comparaison de deux sources se ramène, dans ces conditions, non pas à la mesure des élévations de température horaire produites, mais à la mesure des temps mis par le*

thermomètre pour franchir un même intervalle ; autrement dit les mesures des élévations de températures sont remplacées par des mesures de temps.

La température θ_1 étant fixée, on amène le bain à une température légèrement inférieure et on attend que l'équilibre thermique soit réalisé entre le bain et le calorimètre : la différence de température calorimètre-enceinte va, en effet, diminuer peu à peu, des échanges de chaleur s'effectuant par les fils des couples. On peut, du reste, amener rapidement le calorimètre à la température voulue en refroidissant ou en réchauffant le bain de 1 ou 2/10 de degré pendant quelques minutes, ce qui a pour effet d'augmenter considérablement les échanges de chaleur, puis on ramène le bain à la température convenable.

Lorsque l'on suppose l'équilibre thermique à peu près réalisé, on branche l'un des couples sur le galvanomètre dont on a, auparavant, ramené le spot au zéro. Admettons que la température du calorimètre soit un peu inférieure à celle du bain : le spot se trouve sur la partie gauche de l'échelle, ce sens ayant été choisi arbitrairement une fois pour toutes. Le calorimètre s'échauffant, le spot se rapproche du zéro et l'atteint bientôt : il s'agit à ce moment-là d'« accrocher » la température du bain, autrement dit de mettre en route le dispositif de compensation automatique.

En ce but, les cellules ont été mises sous tension et le potentiomètre du microrelais réglé de manière que ce relais bascule franchement au moment où la cellule est éclairée et retombe lorsque le spot quitte la cellule. Ces deux conditions sont parfois difficiles à obtenir en raison des courants d'hystérésis de certaines photo-résistances.

Le réglage de la minuterie M_1 donne le temps d'ouverture de l'électro-vanne. Suivant l'intensité de la source et par conséquent la vitesse du spot, on détermine au jugé, avec un peu d'habitude, cette temporisation. Un temps trop long donne au spot une élongation de retour trop considérable ; un temps trop court ne lui donne pas une élongation suffisante pour sortir du champ de la cellule et dès lors le spot n'actionne plus l'électro-vanne et part en dérive sur la partie droite de l'échelle, le calorimètre s'échauffant seul. On règle donc tout d'abord la minuterie de manière à obtenir une élongation de retour de quelques millimètres ; on diminue ensuite légèrement cette temporisation au cours des premiers cycles, de façon à garder une marge de sécurité suffisante.

Les réglages de M_2 et M_3 s'effectuent pendant les premiers cycles : la temporisation de M_2 la plus convenable est de l'ordre d'un demi-cycle, soit 35 à 45 secondes ; la temporisation de M_3 varie suivant l'intensité de la source : pour une forte source, cette temporisation sera brève, de l'ordre de 1 minute, une intervention manuelle devant avoir lieu rapidement en cas de « décrochage » de l'installation vu la plus grande vitesse du spot.

Un dernier réglage consiste à placer convenablement la cellule de

déclenchement de l'électro-vanne : l'intensité de la source et, par conséquent, la vitesse du spot déterminent cette position. Si l'on considère à nouveau la courbe des déplacements du spot en fonction du temps, $\delta = f(t)$, on voit que la tangente à l'origine fera un angle plus grand avec l'axe des temps pour une forte source que pour une faible source : la cellule dans ce cas devra être plus près du zéro si l'on veut conserver une surface nulle pour chaque cycle.

Lorsque le dispositif de compensation automatique est en marche depuis 15 ou 20 minutes, on peut estimer que le régime thermique du calorimètre est établi et l'on peut commencer à évaluer les températures.

Il est indispensable de faire la lecture du thermomètre à un instant donné du cycle, toujours le même, la température du bain ayant tendance à baisser entre chaque coup d'électro-vanne. Au moment où la température du bain est peu inférieure à la température Θ_1 choisie, on repère donc l'indication du thermomètre au moment précis du déclenchement de l'électro-vanne, en même temps que l'on note d'indication du chronomètre : la courbe $\Theta = f(t)$ est ainsi tracée pendant une dizaine de cycles ; par extrapolation on détermine le temps exact t_1 correspondant à la température Θ_1 . On opérera de même pour Θ_2 et, le cas échéant, pour toute température intermédiaire permettant de contrôler le résultat final.

CHAPITRE V

Discussion de la méthode.

L'étude que nous avons faite suppose le fonctionnement adiabatique de notre appareil. En pratique, des échanges de chaleur entre l'enceinte et le calorimètre peuvent se produire soit par rayonnement, soit par conductibilité dans les fils et dans l'air. Le calcul et l'expérience montrent que ces échanges sont extrêmement faibles et n'altèrent pratiquement pas la précision des mesures lorsque les sources sont suffisamment intenses.

1) *Calcul des pertes de chaleur.* — Nous allons calculer les pertes de chaleur par rayonnement et par conductibilité en supposant une différence de température $\Delta\theta$ de 1 millième de degré entre l'enceinte et le calorimètre.

a) *PERTE DE CHALEUR PAR RAYONNEMENT.* — Bien que nous soyons très loin du cas idéal du corps noir, surtout si nous avons un calorimètre en or, nous appliquerons la loi de Stefan.

Le calorimètre et l'enceinte rayonnent proportionnellement à θ^4 et $(\theta + \Delta\theta)^4$. La différence de l'énergie rayonnée par centimètre carré est :

$$W = \sigma[\theta^4 - (\theta + \Delta\theta)^4] \simeq 4\sigma\theta^3\Delta\theta,$$

$\Delta\theta$ étant très petit devant θ , soit, en joules par seconde et par centimètre carré, en prenant $\theta \simeq 290^\circ$ absolus :

$$W = 4,6 \times 10^{-7}$$

et en calories par heure et par centimètre carré :

$$W = 4 \times 10^{-4}.$$

Pour un calorimètre de 30 cm^2 , ce nombre devient :

$$W = 10^{-2} \text{ cal/heure.}$$

En fait, les pertes de chaleur par rayonnement sont nettement plus faibles puisque le calorimètre ne peut pas être assimilé à un corps noir.

b) PERTE DE CHALEUR PAR CONDUCTIBILITÉ DANS LES FILS. — Nous prendrons le cas d'un calorimètre possédant deux couples : les fils de constantan mesurent 20 cm depuis le calorimètre jusqu'à l'enceinte, leur diamètre est de 0,2 mm. La loi de transmission de chaleur dans une barre, analogue à la loi d'Ohm, peut s'écrire :

$$Q = K \frac{\Delta\theta}{l} \text{ st.}$$

En prenant $K = 0,1$ pour le constantan, on obtient :

$$Q = 1,1 \times 10^{-5} \text{ cal/heure.}$$

En fait, les échanges de chaleur doivent être plus petits encore, car il faudrait tenir compte de la transmission de la chaleur à travers la paroi de verre qui isole le couple sur l'enceinte.

Il faut aussi tenir compte des échanges de chaleur possibles entre le calorimètre et l'extérieur par l'intermédiaire des fils de cuivre. La longueur de ces fils est d'environ 1 m du calorimètre jusqu'au contacteur placé dans la boîte du galvanomètre. En prenant $K = 1$ pour le cuivre et en supposant une différence de température considérable entre le bain et la pièce, soit par exemple 1° , on trouve :

$$Q = 2 \times 10^{-3} \text{ cal/heure.}$$

c) PERTE DE CHALEUR PAR CONDUCTIBILITÉ DANS L'AIR. — De la même façon, nous écrivons :

$$Q = K \frac{\Delta\theta}{l} \text{ st.}$$

Nous prendrons $K = 5,7 \times 10^{-5}$ pour l'air ; la surface s sera celle du calorimètre, soit 30 cm^2 dans le cas considéré ; la longueur l sera égale au rayon de l'enceinte, 15 cm . Donc :

$$Q = 4 \times 10^{-4} \text{ cal/heure.}$$

Le calcul montre donc que les pertes de chaleur par conductibilité et par rayonnement sont du même ordre de grandeur.

On ne peut guère réduire les pertes par rayonnement qu'en utilisant des métaux polis. Il est par contre possible de diminuer les pertes par conductibilité.

On peut réduire les pertes par le constantan en augmentant la longueur des fils et en diminuant leur section. On peut atténuer les pertes par le cuivre en maintenant le bain à une température voisine de celle de la pièce.

Il serait aussi possible d'augmenter progressivement la température de la pièce ou tout au moins de la boîte du galvanomètre afin de suivre constamment la température du bain ; mais on risquerait, dans ces conditions, de provoquer d'importants déplacements du zéro du galvanomètre qui viendraient fausser les mesures.

On pourrait enfin supprimer les pertes de chaleur par l'air en travaillant dans le vide. Mais la complication qui en résulterait ne permet pas d'envisager cette possibilité : du reste, la conservation des sources interdit de travailler dans le vide où toute source scellée telle qu'un étalon de radium risquerait d'éclater.

2) *Mesure des pertes de chaleur.* — Deux méthodes permettent d'évaluer les échanges de chaleur : la mesure du mouvement propre apparent avec décalage du zéro et l'étude de la dérive du spot en l'absence de toute source radio-active.

a) *MESURE DU MOUVEMENT PROPRE APPARENT AVEC DÉCALAGE DU ZÉRO.* — L'expérience consiste à provoquer une déviation du spot par un échauffement ou un refroidissement du bain, et maintenir constante la différence de température $\Delta\theta$ entre le bain et le calorimètre en obligeant le spot à osciller autour d'une graduation déterminée δ . Il suffit d'employer le dispositif ci-dessus décrit de compensation automatique, en déplaçant les cellules par rapport au zéro de l'échelle. Dans ces conditions, l'échauffement du bain ΔT au bout d'un temps donné est égal à l'échauffement du calorimètre et les échanges de chaleurs s'écrivent simplement :

$$Q = mc\Delta T$$

et pour une différence de température bain-calorimètre de 1 millième de degré :

$$Q_0 = mc \frac{\Delta T}{\Delta \theta}.$$

Cette expérience a été faite avec chaque calorimètre pour différentes valeurs δ du décalage du zéro : on obtient ainsi un mouvement propre apparent ΔT fonction de δ et par conséquent de $\Delta \theta$. La méthode de compensation automatique a toujours pu être employée, même dans le cas d'un bain plus froid que le calorimètre : les échanges de chaleur avaient lieu dans le sens calorimètre-enceinte provoquant un refroidissement du système ; l'électro-vanne venait alors réchauffer le bain pour limiter son refroidissement permanent causé par la détente de l'air comprimé.

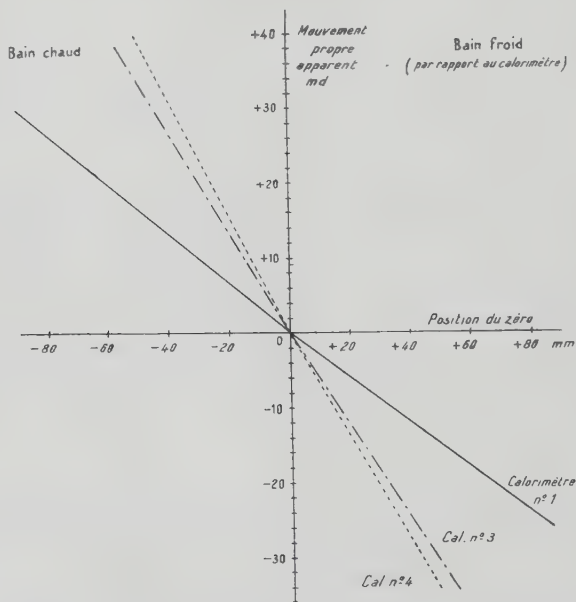


Fig. 13. — Mesure du mouvement propre apparent avec décalage du zéro.

La figure 13 montre les courbes $\Delta T = f(\Delta \theta)$ pour trois calorimètres étudiés. On dégage de l'examen de ces courbes les conclusions suivantes :

— Le mouvement propre apparent ΔT d'un calorimètre est une fonction linéaire de la différence de température $\Delta \theta$ existant entre ce calorimètre et son enceinte, ce qui est en accord avec la théorie.

— Ce mouvement propre est à peu près symétrique par rapport au zéro : les échanges de chaleur sont donc réversibles.

— Si l'on considère différents calorimètres *montés de la même façon*, on s'aperçoit que le mouvement propre apparent ΔT est inversement proportionnel à la masse calorimétrique mc : autrement dit, les échanges

de chaleur $Q = mc\Delta T$ sont identiques, ce qui était théoriquement prévisible.

Le tableau suivant résume les résultats trouvés avec trois calorimètres montés différemment, pour un $\Delta\theta = 1$ millidegré.

On en déduit les corrections à apporter éventuellement à une mesure dans le cas d'une dérive accidentelle du zéro. Si l'on constate par exemple une dérive de 2 mm en 1 heure avec le calorimètre n° 1, soit un zéro décalé en moyenne de 1 mm, on aura eu un mouvement propre apparent de 0,4 millidegré que l'on pourra déduire, s'il n'est pas négligeable, du résultat obtenu.

Calorimètre n°	Métal	Poids du calorimètre (grammes)	mc	Q_0 (*) calories	$\Delta T = \frac{Q_0}{mc \text{ md}}$
1	Pb	300	9	0,017	1,9
3	Pb	70	2,1	0,008	3,8
4	Au	27	0,8	0,0033	4,1

(*) A titre de comparaison, rappelons qu'un millicurie de radium dégage environ 0,141 calorie par heure.

L'emploi de calorimètres de plus en plus petits donnant des élévations de température de plus en plus grandes pour une même source permet d'augmenter la précision des mesures, mais le mouvement propre apparent augmente de la même façon. Il y a là un écueil qui ne peut être évité que par la diminution des échanges de chaleur.

b) ÉTUDE DE LA DÉRIVE DU SPOT. — Si l'on supprime tout apport de chaleur extérieure, le bain abandonné à lui-même se refroidit spontanément par évaporation ; ce refroidissement est très lent puisque le bain est presque entièrement clos, mais il peut être plus rapide si le bain est agité par de l'air comprimé, la détente de l'air dans l'eau absorbant de la chaleur. On peut régler l'abaissement de température horaire ΔT en agissant sur le débit d'air comprimé : une agitation moyenne dans le bain considéré peut produire un refroidissement de 50 à 100 md par heure. Cette valeur peut être augmentée dans de grandes proportions si l'air n'est pas saturé d'eau avant de pénétrer dans le bain.

L'expérience consiste à laisser le bain se refroidir doucement sous l'action d'un débit constant d'air comprimé. Le spot, libéré, va quitter le zéro et se mettre à dériver en raison de la différence de température bain-calorimètre. Cette dérive, d'abord linéaire, se ralentit bientôt et le

spot finit par se fixer sur une graduation bien déterminée ; la courbe décrite est de la forme $\delta = 1 - e^{-\lambda t}$ (voir fig. 14).

S'il n'y avait aucun échange de chaleur entre le calorimètre et le bain, il est clair que le spot continuerait à dériver indéfiniment. L'asymptote vers laquelle tend le spot montre au contraire qu'un état de régime s'établit : la différence de température entre le calorimètre et le bain tend vers un maximum, l'abaissement de température ΔT du

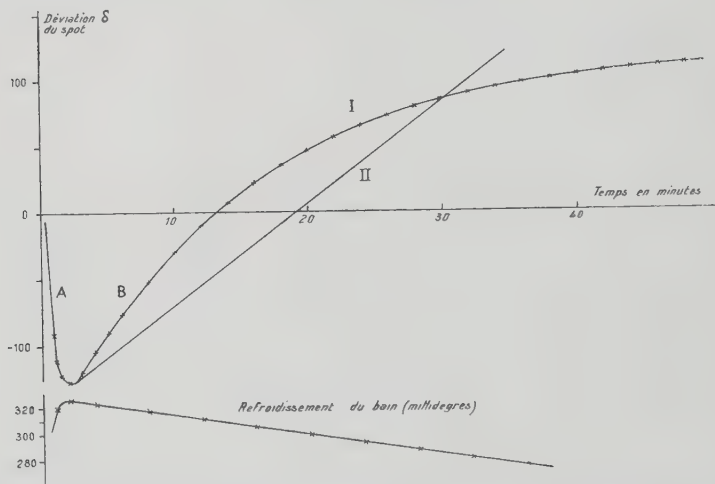


Fig. 14. — Étude de la dérive du spot en l'absence de source radio-active.

I. — Courbe expérimentale :

A : réchauffement brusque du bain ;

B : refroidissement progressif du bain.

La dérive du spot tend vers une limite en raison des échanges de chaleur.

II. — Courbe théorique, déduite de la courbe de refroidissement du bain, en supposant nuls les échanges de chaleur.

calorimètre suit alors exactement celle du bain. Soit δ l'élongation du spot à l'asymptote, s la sensibilité du dispositif ; la différence de température $\Delta\theta$ entre calorimètre et enceinte est :

$$\Delta\theta = \frac{\delta}{s}.$$

La perte de chaleur du calorimètre s'écrit encore :

$Q = mc\Delta T$ pour une différence de température $\Delta\theta$ et pour une différence de température d'un millième de degré :

$$Q_0 = mc \frac{\Delta T}{\Delta\theta}.$$

L'analyse de la courbe, segment par segment, permet de vérifier ce résultat.

Nous avons appliqué cette méthode pour chaque calorimètre étudié, ce qui nous a permis de confirmer les résultats obtenus au paragraphe précédent.

Ces deux méthodes ont l'inconvénient de faire intervenir la masse calorimétrique, mais c'est une grandeur mesurable : d'une part, la masse d'un calorimètre peut être obtenue avec une bonne précision, la masse des fils étant négligeable en première approximation lorsque le calorimètre n'est pas trop petit ; d'autre part, les chaleurs spécifiques sont assez bien connues, tout au moins lorsqu'il s'agit de métaux purs. Il reste une imprécision sur la masse calorimétrique de l'air contenu dans l'enceinte qui est chauffé en partie par le calorimètre et en partie par l'enceinte. De toute manière, on ne peut éliminer cette quantité *mc* dans le calcul des quantités de chaleur puisque les mesures portent sur des différences de température.

3) **Conclusion pratique.** — Si l'on admet au cours de chaque cycle des différences de température n'excédant pas un millième de degré (oscillations du spot de 4 à 5 mm d'amplitude), les échanges de chaleur restent extrêmement faibles. De plus, ils se produisent alternativement dans l'un et l'autre sens : par un réglage judicieux de la position de la cellule sur l'échelle, on arrive à annuler tout échange de chaleur en donnant au spot une même elongation de part et d'autre du zéro, ou plus exactement en faisant en sorte que la surface totale du cycle ($t, \Delta T$) soit nulle ; l'expérience montre que l'on obtient ce résultat en plaçant la cellule à 2 ou 3 mm du zéro, dans le sens de dérive du spot (fig. 12, partie positive de l'échelle). Cette position de la cellule dépend de la vitesse du spot et, par conséquent, de l'intensité de la source mesurée : dans le cas d'une source très intense, le spot franchira le zéro avec une grande vitesse et pénétrera plus loin dans la partie positive de l'échelle avant d'être ramené en arrière par la surchauffe du bain.

La précision reste cependant limitée par la dérive spontanée du zéro qui peut atteindre parfois 2 mm par heure. Tout se passe alors comme si la compensation donnait, en moyenne, une surchauffe dans l'un ou l'autre sens. Des mesures faites avec un zéro volontairement décalé ont montré que les échanges de chaleur sont encore négligeables pour des dérives de quelques millimètres par heure, en particulier lorsque les mesures portent sur de grosses sources pour lesquelles le débit de chaleur est considérable. Néanmoins, il est encore nécessaire de ramener le galvanomètre au zéro plusieurs fois dans la journée lorsque les sources étudiées sont faibles.

TROISIÈME PARTIE

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

CHAPITRE PREMIER

Mesures de périodes radioactives.

Nous avons entrepris avec notre dispositif de microcalorimétrie la détermination précise de périodes radio-actives variant de quelques dizaines d'années (actinium) à quelques jours (radon, actinium X).

Nous avons tout d'abord étudié la sensibilité de notre dispositif en mesurant la décroissance de la chaleur dégagée par une source de radon dans un calorimètre de plomb pesant environ 300 g. Une première source de chaleur a été suivie pendant 21 jours, son intensité passant de 82,3 à 1,9 millicuries et l'élévation de température horaire variant parallèlement de 960 à 21.7 millièmes de degré. Les points obtenus se plaçaient sur une courbe exponentielle avec des écarts inférieurs à 0,5 p. 100.

Cette première expérience montrait qu'il devenait possible de mesurer, avec ce dispositif, des sources d'intensité très différente. Notre appareil se prête donc particulièrement bien aux mesures de périodes, et l'on peut espérer obtenir par calorimétrie une précision au moins égale à celle que donnent les chambres d'ionisation. Il est, en effet, possible de suivre directement la décroissance d'un corps radioactif pendant six ou sept périodes.

1) **Radon** ^{222}Rn . — Nous avons mesuré avec notre dispositif la période du radon (^{222}Rn) : ce corps se prête particulièrement bien à une telle étude en raison de son inactivité chimique, ce qui exclut tout risque de dégagement de chaleur provenant d'une combinaison ou décomposition moléculaire.

La période du radon est bien connue depuis les travaux de Bothe (5) en 1933, qui a donné la valeur $3,825 \pm 0,003$ jours, et de I. Curie et C. Chamié (19) en 1924, qui ont trouvé $3,823 \pm 0,002$ jours. La Commission internationale de 1931 (29) a retenu la valeur 3.825 jours. Plus récemment, J. Tobailém (56) a confirmé ce résultat et donné $3,825 \pm 0,004$ jours. Tous ces travaux étaient basés sur l'emploi de la chambre d'ionisation.

Une source de radon en équilibre avec son dépôt actif à évolution

rapide ($\text{RaA} + \text{B} + \text{C} + \text{C}' + \text{C}''$) émet 3 rayons α (Rn , RaA , RaC' ou C), 2 rayons β (RaB , RaC'' ou C), et un grand nombre de rayons γ partiellement absorbés dans les parois du calorimètre. L'énergie totale de transformation d'un atome Rn en RaD correspondant à ces cinq transitions successives est de l'ordre de 20 MeV.

L'équilibre entre Rn et son dépôt actif à évolution rapide est réalisé en quelques heures et déterminé par la période du RaB (26.8 minutes).

Nous avons donc attendu 24 heures avant le début des mesures, l'équilibre radioactif étant alors parfaitement réalisé.

Nous avons suivi par calorimétrie une source de radon pendant 15 jours, l'intensité de cette source passant de 263 à 17,3 millicuries et l'élévation de température horaire variant de 2,536 à 0,167 degrés (fig. 15).

La source utilisée se présentait sous forme d'une ampoule scellée, de 3 cm de long. Elle a été préparée au laboratoire par notre camarade Vartape-tian que nous remercions vivement.

Les mesures de température ont été faites au thermomètre Beckmann au centième de degré (et non pas au millième), étant donné la grande intensité de cette source.

Nous avons tenu compte de la croissance du polonium dans le radon ; le calcul montre que le dégagement de chaleur dû au dépôt actif à évolution lente ($\text{RaD} + \text{E} + \text{F}$) est encore négligeable au bout de 15 jours.

L'analyse des points expérimentaux par la méthode des moindres carrés a conduit à la valeur de la période :

$$T = 3,825 \pm 0,004 \text{ jours.}$$

Ce résultat est en parfait accord avec les valeurs publiées précédemment, bien qu'obtenu par une méthode entièrement différente.

2) **Actinium** ^{227}Ac . — L'actinium décroît en émettant des rayons β de très faible énergie pour donner le radioactinium ; une faible proportion (1,2 p. 100) émet des rayons α de 5 MeV et donne l'actinium K. Une source d'actinium en équilibre avec ses dérivés émet 5 α (RaC ,

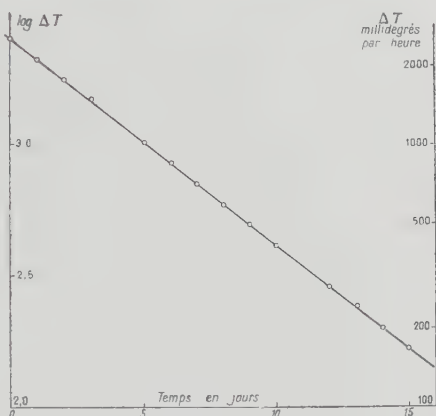


Fig. 15. — Période du radon.

ou Ac, AcX, An, AcA, AcC ou C'), 3 β (Ac ou AcK, AcB, AcC ou C'') et de nombreux γ de faible énergie, presque totalement absorbés dans le calorimètre.

La première détermination de la période de l'actinium a été faite en 1911 par Marie Curie (14) qui a donné la valeur 21 ans. En 1918, O. Hahn et L. Meitner (26), étudiant d'une part la décroissance directe de l'actinium et d'autre part sa croissance dans le protactinium, ont trouvé 20 ans. En 1928, St. Meyer (39), après une étude semblable ayant duré 14 ans, indique la valeur 13,4 ans. En 1944, I. Curie et G. Bouissières (21), après avoir suivi pendant 12 ans la croissance de l'actinium dans le protactinium, donnent 21,7 ans. En 1950, F. Wagner (52) publie la valeur 21,7 ans. La même année, J. M. Hollander et R. F. Leininger (27) ayant étudié, par la méthode d'ionisation différentielle, la décroissance d'une source d'actinium artificiel produit dans une pile par réaction (n, γ) sur le radium, indiquent 22 ans. Enfin, en 1954, J. Tobailem (56) ayant suivi par la même méthode la décroissance d'une source d'actinium, appartenant depuis longtemps au laboratoire Curie, a trouvé la valeur $21,6 \pm 0,4$ ans; la même source mesurée pendant 7 ans au grand condensateur du service des mesures de l'Institut du Radium avait permis d'obtenir $21,8 \pm 1,4$ ans.

Nous avons repris cette même source ainsi qu'une autre de même origine. Le calorimètre employé était en plomb et pesait environ 300 g. Deux séries de mesures ont été faites à 18 mois d'intervalle. La valeur des sources au début des mesures était respectivement de 910 et 745 mg-équivalent de radium, l'élévation de température horaire 548 et 448 millidegrés.

On a obtenu les valeurs de la période :

Source 1 : $21,7 \pm 0,4$ ans,

Source 2 : $21,5 \pm 0,4$ ans,

soit en moyenne : $21,6 \pm 0,3$ ans.

3) **Actinium X**, ^{223}Ra . — L'actinium X décroît, par émission α pour donner l'actinon, qui, lui-même, conduit au dépôt actif de l'actinium, $\text{AcA} + \text{B} + \text{C}' + \text{C}''$. Une source d'actinium X, une fois en équilibre avec ses dérivés, émet un rayonnement de 4 α dus à AcX, An, AcA et AcC (ou AcC') et de 2 β dus à AcB et AcC'' (ou AcC). Un grand nombre de rayons γ de faible énergie accompagnent ces transitions et sont presque totalement absorbés dans le calorimètre.

La période de l'AcX a été déterminée en 1918 par St. Meyer et F. Paneth (40) qui ont donné la valeur 11,2 jours. Cette valeur a été adoptée par la Commission internationale de 1931 (29) et depuis lors aucune mesure de la période n'a été publiée. Il était donc particulièrement intéressant d'étudier à nouveau l'AcX.

La source d'AcX a été préparée au laboratoire Curie par extraction de l'actinium. Nous avons attendu une journée avant de commencer les mesures afin que l'AcX soit en équilibre avec ses dérivés.

Le calorimètre employé était en plomb et pesait 80 g. Nous avons utilisé simultanément un thermomètre au millièmètre et un thermomètre au centièmètre de degré qui ont conduit tous deux au même résultat.

Notre étude a duré 17 jours : nous avons obtenu la valeur :

$$T = 11,22 \pm 0,05 \text{ jours,}$$

soit :

$$\lambda = (7,15 \pm 0,03) \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}.$$

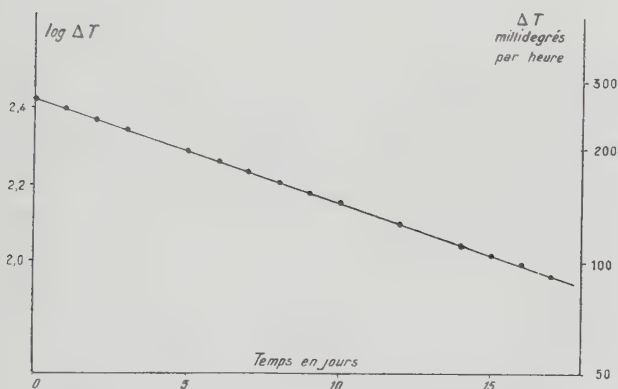


Fig. 16. — Période de l'AcX.

La précision est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$.

Ce résultat est en accord avec la précédente détermination de St. Meyer et F. Paneth.

La figure 16 donne la courbe d'élévation de température horaire en fonction du temps : cette élévation de température a varié de 266 à 92,5 millidegrees par heure. La source a été repassée dans le calorimètre 46 jours après la fin des mesures : l'élévation de température obtenue, de l'ordre de 5 millidegrees par heure, a permis de contrôler l'absence d'impuretés radio-actives de longues périodes dans cette source.

Il semble donc bien que soit confirmée la période anormalement grande de l'AcX pour la loi de Geiger-Nutall (18) (42). Cette irrégularité ne semble pourtant pas pouvoir être expliquée par une discontinuité de la surface d'énergie (M. Z, A), ce noyau se trouvant assez loin des nombres magiques $Z = 82$ et $N = 126$ (7) (12) (60).

CHAPITRE II

**Comparaison des étalons de radium.
Période du radium D.**

Nous avons comparé avec notre installation de calorimétrie, les étalons de radium du laboratoire Curie à l'étalon international et nous avons étudié corrélativement dans quelle mesure on pouvait espérer déterminer la période du radium D par la comparaison d'étalons d'âges différents.

*
..

Les premiers éléments formés à partir du radium, Rn, Ra A + B + C + C' + C'' constituent ce qu'on a coutume d'appeler le dépôt actif à évolution rapide. La période de ces éléments est suffisamment courte pour que l'équilibre radioactif soit rapidement réalisé : la plus longue période est, en effet, celle du radon (3,825 jours) ; par conséquent, au bout de 1 mois, soit 8 périodes de Rn, le radium est déjà en équilibre avec son dépôt actif à évolution rapide à 2^{-8} près, soit à mieux que 0,5 p. 100.

Il n'en est pas de même des autres descendants du radium, Ra D + E + F qui contiennent le dépôt actif à évolution lente : la période du Ra D, qui détermine l'évolution de ce dépôt actif, est en effet de l'ordre de 20 ans ; par conséquent il faudrait attendre plus d'une centaine d'années, soit 6 à 7 périodes de Ra D, pour que le radium soit en équilibre avec ces trois derniers éléments à 1 p. 100 près. La connaissance de la période exacte du Ra D est donc très importante si l'on veut déterminer l'état d'équilibre d'un étalon de radium.

Cependant, la période du Ra D est encore assez mal connue car ce corps ne peut être mesuré que par l'intermédiaire de ses descendants. En effet, le Ra D se transforme en Ra E en émettant des rayons β de très faible énergie, pratiquement impossibles à décélérer, et des rayons γ également très faibles : le Ra E, à son tour, se transforme en Ra F avec une période de 5,013 jours par émission de rayons β d'énergie 1,17 MeV non accompagnés de rayons γ : le Ra F (polonium), enfin, se détruit par émission α avec une période de 138 jours. C'est par la mesure des rayons β du Ra E ou des rayons α du Ra F que l'on peut mesurer l'activité du Ra D, une fois l'équilibre réalisé entre ces trois éléments.

La première mesure de la période du Ra D a été faite en 1910 par

G. N. Antonoff (2) qui a étudié l'accroissement du polonium dans le Ra D et a trouvé 16,5 ans. En 1929, Mme P. Curie et Mme I. Curie (17) donnent 19,5 ans après avoir étudié pendant 16 ans la décroissance directe du Ra D ; la même année, Mme I. Curie (20) mesurant l'accroissement du polonium dans le radon, en déduit une période de 23 ans. La Commission internationale de 1931 (29) adopte une valeur moyenne, soit 22 ans. En 1950, F. Wagner (59) obtient la valeur 25 ans après une étude à la chambre d'ionisation. Enfin, en 1953, J. Tobailem (56) ayant employé un dispositif de chambres d'ionisation différentielle donne $19,40 \pm 0,35$ ans. Bref, la période du Ra D oscille, suivant les auteurs, entre 16,5 et 25 ans avec une valeur probable comprise entre 19,5 et 22 ans.

La divergence de ces résultats nous a incité à étudier s'il était pratiquement possible de déduire la période du radium D de la comparaison des étalons de radium.

Principe de la comparaison des étalons de radium. — Soit x la masse de radium, en milligrammes, contenue dans un étalon. La quantité de chaleur Q émise par unité de temps, par exemple en 1 heure, sera :

$$Q = x \left[Q_{\alpha+\beta+r}(\text{Ra} + \text{Rn}) + KQ_{\gamma}(\text{Rn}) + Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{Ra D} + \text{E} + \text{F}) \frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}} \right] = x \Sigma Q \quad (1)$$

NOTATION EMPLOYÉE. — $Q_{\alpha+\beta+r}(\text{Ra} + \text{Rn})$ = chaleur dégagée par l'absorption complète du rayonnement $\alpha + \beta + r$ émis par 1 mg de Ra + Rn pendant 1 heure, le calorimètre étant supposé construit de telle manière que l'absorption du rayonnement β soit complète.

D'après différents auteurs (18) (64), r étant l'énergie de recul du noyau :

$$Q_{\alpha+r}(\text{Ra}) = 0,0252$$

$$Q_{\alpha+r}(\text{Rn}) = 0,0992 \quad (1)$$

$$Q_{\beta}(\text{Rn}) = 0,0063 \quad (1)$$

$$0,1307 \pm 0,001 \text{ cal-g par heure et par millicurie.}$$

$Q_{\gamma}(\text{Rn})$ = Chaleur dégagée par l'absorption complète du rayonnement γ émis par le radon (1), soit 0,0094 cal-g par heure et par millicurie.

K = coefficient d'absorption du rayonnement γ dans le calorimètre utilisé, soit $0,5 \pm 0,1$, l'épaisseur du calorimètre étant 1 cm. Par conséquent $KQ_{\gamma}(\text{Rn}) = 0,005 \pm 0,001$.

(1) Par Rn on entend le radon en équilibre avec ses dérivés Ra A + B + C + C' + C''.

$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{Ra D} + \text{E} + \text{F}) =$ chaleur dégagée pendant 1 heure par l'absorption complète du rayonnement $\alpha + \beta + \gamma + r$, émis par 1 milli-curie de Ra D en équilibre radioactif avec ses dérivés.

D'après les mêmes auteurs (18) (64) :

$$Q_{\alpha+r}(\text{Ra F}) = 0,02715$$

$$Q_{\beta+\gamma}(\text{Ra D} + \text{E}) = 0,00196$$

$$0,02911 \pm 0,0005 \text{ cal-g par heure et par milli-curie.}$$

$t =$ temps d'accumulation de Ra D + E + F dans l'étalon de radium.

$e^{-\lambda_0 t} =$ facteur de décroissance du radium pendant le temps t .

$f(\lambda_2 t) =$ facteur d'accumulation du Ra F dans l'étalon de radium pendant le temps t . Nous admettons en première approximation que ce facteur est le même pour Ra D et Ra F :

$$f(\lambda_2 t) = \lambda_2 \lambda_4 \left[\frac{e^{-\lambda_0 t}}{(\lambda_4 - \lambda_0)(\lambda_2 - \lambda_0)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_4 - \lambda_2)(\lambda_0 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_4 t}}{(\lambda_2 - \lambda_4)(\lambda_0 - \lambda_4)} \right].$$

Nous avons pris les valeurs de λ suivantes :

Pour Ra : $\lambda_0 = 4,359 \cdot 10^{-4} \text{ an}^{-1}$ ($T = 1590 \text{ ans}$).

Pour Ra F : $\lambda_4 = 1,808 \text{ an}^{-1}$ ($T = 140 \text{ jours}$).

Reprenons l'équation (1) : la quantité de chaleur Q produit, pendant 1 heure, dans un calorimètre de masse calorimétrique mc une élévation de température θ telle que $Q = mc\theta$.

Nous avons vu plus haut que nous déterminons le temps h que met la colonne de mercure du thermomètre pour parcourir un certain intervalle Θ , soit :

$$\theta = \frac{\Theta}{h}.$$

Donc finalement :

$$mc \frac{\Theta}{h} = x \Sigma Q.$$

On élimine la masse calorimétrique mc en comparant dans un même calorimètre plusieurs étalons pesés. Nous avons tout d'abord comparé des étalons de même âge, puis des étalons d'âges différents connus, enfin des étalons dont la date de préparation est inconnue.

Comparaison des étalons de radium de même construction et de même âge. — Les facteurs $e^{-\lambda_0 t}$ et $f(\lambda_2 t)$ sont les mêmes. Le rapport des masses de radium contenues dans les étalons est égal au rapport inverse des temps mis par le thermomètre pour parcourir l'intervalle Θ :

$$\frac{x_1}{x_2} = \frac{h_2}{h_1}.$$

Nous avons comparé ainsi les trois étalons Hönigschmid actuellement détenus par le laboratoire Curie.

N° étalon	Poids de radium en 1934 (*)	Poids total de l'ampoule
5 430 (**)	16,92 mg	291,58 mg
5 422	24,78 »	343,72 »
5 438	38,06 »	292,02 »

(*) On a pris comme poids atomique du radium la valeur 226,09.
 (**) Nouvel étalon international (II, 28).

Ces trois tubes ont été mesurés dans un calorimètre de plomb de 300 g. On s'est servi de la même gaine de laiton pour leur introduction dans le calorimètre. Nous n'avons pas tenu compte dans ces expériences de la faible différence de masse des ampoules : la différence de masse calorimétrique ainsi négligée correspondant à celle de 0,2 g de plomb, l'erreur commise est inférieure à 1/1 000

L'intervalle Θ utilisé correspond à 3 degrés de l'échelle du thermomètre Beckmann au 1/100. On a obtenu les résultats suivants :

Rapport des temps	Rapport des poids	Rapport des rayonnements extérieurs
$\frac{5\ 422}{5\ 430} = 1,4605 \pm 0,003$	$1,4645 \pm 0,01$	1,4613 (*)
$\frac{5\ 438}{5\ 430} = 2,2352 \pm 0,005$	$2,2494 \pm 0,01$	Non déterminé
$\frac{5\ 438}{5\ 422} = 1,530 \pm 0,003$	$1,535 \pm 0,01$	Non déterminé

(*) Mesure effectuée à Bruxelles, en 1954, avec les chambres Kipfer (non publié).

Le rapport des temps est donc, aux erreurs expérimentales près, égal au rapport des poids. L'écart semble néanmoins un peu plus important dans le cas du rapport $\frac{5\ 422}{5\ 430}$.

Comparaison d'étalons de radium d'âges différents bien connus. — Le rapport des temps mis par le thermomètre pour parcourir l'intervalle de l'échelle Θ est :

$$\frac{h_2}{h_1} = \frac{x_1}{x_2} \cdot \frac{Q_1}{Q_2},$$

en adoptant les notations du précédent paragraphe ; les indices 1 et 2 se rapportent aux étalons étudiés.

Nous avons comparé deux étalons d'âges très différents, l'étalon international nouveau, construit en 1934 par Hönigschmid (étalon n° 5430 décrit plus haut), et l'ancien étalon international construit en 1911 (15).

L'ancien étalon international a été construit par Marie Curie en août 1911 (Purification en Ra D, scellement du tube de verre et

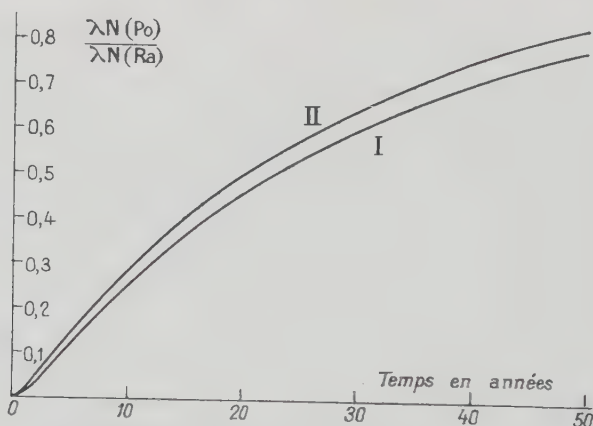


Fig. 17. — Croissance du polonium dans le radium. Le calcul a été fait en prenant pour période du radium D les valeurs 22 ans (courbe I) et 19,5 ans (courbe II).

pesée). La masse du chlorure de radium anhydre contenu dans le tube était de 21,99 mg ; la masse totale du tube 102,2 mg ; son diamètre intérieur est de 0,9 mm ; l'épaisseur de la paroi de verre est de 0,27 mm ; la longueur de l'espace occupé par le sel est de 32 mm. Le sel est composé de grains très fins et occupe la totalité du volume disponible à l'intérieur du tube. Il n'est cependant pas tassé, puisque la densité apparente est de l'ordre de 1.

Si l'on admet pour poids atomique du radium 226,09 la masse de radium élément contenue dans cet étalon était de 16,738 mg en août 1911.

Nous pouvons donc calculer le rapport $\frac{x_1}{x_2}$ ci-dessus pour différentes valeurs de la période du Ra D et nous comparerons ensuite le résultat obtenu au rapport des poids et au rapport des rayonnements γ extérieurs des deux étalons.

Pour l'étalon de Marie Curie, le calcul de la fonction $f(\lambda_2 t)$ pour

$t = 45$ ans (expériences faites en 1956) et $T_{\text{RaD}} = 19,5$ ans et 22 ans, donne :

$$f(\lambda_2 t) = 0,7853 \text{ et } 0,7450,$$

d'où :

$$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{RaD} + \text{E} + \text{F}) \frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_2 t}} = 0,0226 \text{ et } 0,0214.$$

Pour l'étalon international nouveau, on trouve de même, avec $t = 22$ ans :

$$f(\lambda_2 t) = 0,5291 \text{ et } 0,4890,$$

d'où :

$$Q_{\alpha+\beta+\gamma+r}(\text{RaD} + \text{E} + \text{F}) \frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_2 t}} = 0,0155 \text{ et } 0,0144.$$

Deux déterminations du rapport $\frac{h(\text{IN})}{h(\text{MC})}$ ont été faites, les rapports trouvés sont 1,0258 et 1,0278.

Compte tenu de la différence des masses calorimétriques des deux étalons qui correspond à 0,189 g de verre dont la chaleur spécifique est de l'ordre de 0,2, on obtient en définitive les résultats suivants :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9766 \text{ et } 0,9784 \text{ pour } T_{\text{RaD}} = 19,5 \text{ ans.}$$

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9769 \text{ et } 0,9788 \text{ pour } T_{\text{RaD}} = 22 \text{ ans.}$$

$$\pm 0,0006$$

(limite d'erreur obtenue, pour chacun des nombres, à partir des valeurs données au paragraphe « notation employée »).

Soit en moyenne :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9777 \pm 0,002.$$

Le rapport des poids des étalons est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9794 \pm 0,005.$$

Le rapport des rayonnements γ extérieurs mesurés à plusieurs reprises au laboratoire Curie depuis 1935 est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9775 \pm 0,005.$$

Le même rapport déterminé à Bruxelles en 1954-1955 par Mme Joliot, M. Kipfer et M. Lecoin, est :

$$\frac{x(\text{MC})}{x(\text{IN})} = 0,9775 \pm 0,002.$$

Les résultats obtenus par calorimétrie sont donc en accord avec ceux donnés par la mesure des rayonnements γ .

La précision de nos résultats est de $2 \cdot 10^{-3}$. Cette précision est malheureusement insuffisante pour nous permettre de donner une valeur, même approchée, de la période du RaD. Le calcul montre, en effet, que la valeur de cette période influe fort peu sur le résultat : il faudrait obtenir le rapport cherché à 10^{-4} pour pouvoir donner, à 1 an près, la période du RaD.

Du reste, l'erreur commise dans la mesure calorimétrique n'est pas seule en cause : l'imprécision sur la quantité de chaleur horaire dégagée par un millicurie de radium ajoutée à notre détermination une erreur de $6 \cdot 10^{-4}$ encore considérable, eu égard au résultat cherché.

Enfin, la quantité de radium contenue dans ces étalons est connue à $5 \cdot 10^{-3}$ seulement : la faible masse des étalons, la composition mal définie du sel de radium pesé, l'incertitude sur le poids atomique du radium, la très grande difficulté de la pesée, par différence, d'un sel particulièrement hygroscopique ne permettent pas, en effet, d'avoir une meilleure précision sur la masse de radium-élément effectivement contenu dans ces tubes.

La précision insuffisante de notre résultat tient aussi au fait que nous n'avons pu faire porter notre comparaison que sur un seul étalon suffisamment ancien, l'étalon de Marie Curie, car il n'existe aucun autre étalon pesé antérieur à 1934.

Néanmoins, le principe de cette comparaison reste valable, et on peut espérer que cette étude pourra être reprise plus tard avec de nouveaux étalons par comparaison aux étalons Hönigsmid de 1934.

Comparaison des étalons de radium d'âges ou de composition mal connus. — Si l'on ignore la date de préparation d'un étalon ou même

Étalon		Date de préparation	Rapport $\frac{x_1}{x_2}$ (calorimétrie)	R pports à γ	Étalon de comparaison
N°	Intensité (millicuries)				
E 12	1,36	1907 ?	0,0820	0,0828	MC
2 405	2	Avant 1934	0,121 ₁	0,119 ₄	IN
(*)	16	1912	1,014	1,020	MC
E 23	19	1907	1,134	1,133	IN
20	100	Avant 1920	5,91 ₂	5,88 ₇	IN

(*) Secondaire français.

la date de séparation du Ra D, il n'est plus possible de calculer la fonction :

$$Q_{\alpha + \beta + \gamma + \dots} (\text{Ra D} + \text{E} + \text{F}) \frac{f(\lambda_2 t)}{e^{-\lambda_0 t}},$$

d'où l'impossibilité de calculer avec précision le rapport $\frac{x_1}{x_2}$ à partir des mesures calorimétriques $\frac{h_1}{h_2}$.

Nous résumons dans le tableau ci-dessus les résultats que nous avons obtenus par calorimétrie en regard des mesures γ faites au laboratoire Curie ou à Bruxelles. Les comparaisons ont été effectuées pour deux étalons par rapport à l'étalon de Marie Curie, pour les trois autres par rapport à l'international nouveau.

CONCLUSION

Les expériences que nous avons faites concernant la mesure précise des périodes radio-actives, nous ont permis de fructueuses comparaisons sur la validité des méthodes employées et l'opportunité de chacune d'elles.

Les chambres d'ionisation présentent l'avantage appréciable de pouvoir être utilisées pour l'étude de très faibles sources radio-actives, de l'ordre du microcurie, alors que la méthode calorimétrique exige des sources beaucoup plus intenses, au moins égales à quelques centaines de microcuries. Par contre, les chambres d'ionisation deviendront inutilisables pour la mesure des très grosses sources (plusieurs centaines de millicuries ou plusieurs curies), et seule la méthode calorimétrique s'en accommodera : en fait, plus la source sera intense, plus grande sera la précision obtenue.

Selon la nature des sources, on aura intérêt à adopter telle ou telle méthode : une source exclusivement γ devra, en général, être étudiée par chambre d'ionisation, le rayonnement γ n'étant qu'imparfaitement absorbé par les parois du calorimètre surtout si la source est faible et par conséquent si le calorimètre est petit. Par contre, une source α aura tout intérêt à être mesurée dans le calorimètre ; si la source est fermée, la méthode calorimétrique est même la seule possible, le rayonnement α étant absorbé dans le support lui-même.

Ces deux réserves étant faites, nous concluons en rappelant brièvement les grands avantages de la méthode calorimétrique.

La géométrie de l'appareillage est sans importance : le rayonnement de la source est absorbé quelle que soit la position de celle-ci à l'intérieur du calorimètre et il est possible de la retirer et de la remettre entre les mesures sans prendre de précautions spéciales : il devient donc possible d'opérer toujours strictement dans les mêmes conditions.

On sait, par contre, combien les conditions de géométrie ont d'importance dans les chambres d'ionisation.

D'autre part, on n'est guère limité, dans le domaine des fortes élévations de température, que par l'étendue de l'échelle thermométrique, ce qui permet la mesure directe de très fortes sources, même α . Il est théoriquement possible de mesurer des sources dans un rapport d'intensité quelconque, aussi grand soit-il. Bien au contraire, dans le cas des chambres d'ionisation, on est limité en ce sens par la saturation de l'appareil, saturation qui, par surcroît, dépend d'un grand nombre de facteurs et n'est jamais parfaitement connue.

Enfin, la méthode calorimétrique permet des mesures simultanées de radio-activité α , β et γ . Il devient ainsi possible de suivre l'évolution d'un mélange de radio-éléments émetteurs quelconques.

Mais un tel emploi de la méthode calorimétrique n'est rendu possible que grâce à l'automatisme de fonctionnement du dispositif que nous avons réalisé.

Le nouveau calorimètre à compensation automatique que nous avons mis au point a donné des preuves de son efficacité en nous permettant d'atteindre, dans la mesure des périodes radio-actives, une précision au moins égale à celle qui est atteinte avec les méthodes des chambres d'ionisation. D'autre part, la mesure des étalons de radium, que nécessitait l'étude de la période du radium D, nous a montré que l'on pouvait comparer directement les masses de radium contenues dans les étalons avec une précision qui est égale, sinon supérieure à celle qui résulte des pesées. Il devient enfin possible de comparer directement avec le même calorimètre des sources dont le rapport d'intensité est de l'ordre de 100, et l'emploi de calorimètres de poids très différents offre la possibilité d'atteindre le rapport 10 000, ce qui ne peut être réalisé par aucune autre méthode.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) K. ANGSTRÖM. — *Phys. Zeit.*, 1905, **6**, 685.
- (2) G. N. ANTONOFF. — *Phil. Mag.*, 1910, **19**, 825.
- (3) J. G. BAYLY. — *Can. Journ. Research*, 1950, **28 A**, 520.
- (4) F. BEGEMANN et F. G. HOUTERMANS. — *Z. Naturforsch.*, 1952, **79**, 143.
- (5) W. BOTHE. — *Zeit. f. Phys.*, 1923, **46**, 226.
- (6) R. BOUCHEZ, P. et R. DAUDEL, R. MUXART et A. ROGOZINSKI. — *J. Phys. et Rad.*, 1949, **10**, 201.
- (7) R. BOUCHEZ, J. ROBERT et J. TOBAILEM. — *J. Phys. et Rad.*, 1953, **14**, 281.
- (8) R. BUNSEN. — Cf. (18).
- (9) N. B. CACCIAPUOTI. — *Nuovo Cimento*, 1938, **15**, 213.
- (10) E. CALVET et H. PAT. — *Microcalorimétrie*. Paris, 1956.

- (11) C. CHAMIÉ. — *J. Phys. et Rad.*, 1940, **8**, 319.
- (12) C. CORYELL. — *Progress Report*, 31 mai 1951, 71, M. I. T.; *Ann. Rev. Nuclear Science*, janvier 1953.
- (13) P. CURIE et J. DEWAR. — *J. Chim. Phys.*, 1903, **1**, 409.
- (14) M. CURIE. — *Le Radium*, 1911, **8**, 353.
- (15) M. CURIE. — *J. Phys. et Rad.*, 1912, **2**, 715.
- (16) M. CURIE. — *Ann. de Physique*, 1924, **2**, 405.
- (17) M. CURIE et I. CURIE. — *J. Phys. et Rad.*, 1929, **10**, 385.
- (18) M. CURIE. — *Traité de radioactivité*, 1935.
- (19) I. CURIE et C. CHAMIÉ. — *J. Phys. et Rad.*, 1924, **5**, 238.
- (20) I. CURIE. — *J. Phys. et Rad.*, 1929, **10**, 388.
- (21) I. CURIE et G. BOUSSIÈRES. — *Cahiers de Physique*, 1944, **26**, 1.
- (22) R. DAUDEL. — *La Revue Scientifique*, 1947, **162**, 3266.
- (23) A. DORABIALSKA. — *Bull. Acad. Pol.*, A, 1929, **487**.
- (24) W. DUANE. — *C. R.*, 1909, **148**, 1448.
- (25) C. ELLIS et W. WOOSTER. — *Proc. Roy. Soc.*, 1927, **117**, 109.
- (26) O. HAHN et L. MEITNER. — *Phys. Zeit.*, 1918, **19**, 208.
- (27) J. M. HOLLANDER et R. F. LEININGER. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 915.
- (28) O. HÖNIGSCHMID. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1945, 453 a.
- (29) INTERNATIONAL RADIUM STANDARD COMMISSION REPORT. — *Rev. Mod. Phys.*, 1931, **3**, 427.
- (30) E. D. KLEMA et A. O. HANSON. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 106.
- (31) J. J. KRAUSHAAR, E. D. WILSON et K. T. BAINBRIDGE. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 610.
- (32) E. LANGE. — *Zeit. f. Phys. Chem.*, 1925, **116**, 161.
- (33) M. LECOIN et I. ZLOTOWSKI. — *Nature*, 1939, **144**, 440.
- (34) M. LECOIN. — *C. R.*, 1947, **224**, 912.
- (35) M. LECOIN, M. PERREY et A. POMPEI. — *J. Chim. Phys.*, 1949, **46**, 158.
- (36) R. F. LEININGER, E. SEGRÉ et C. WIEGAND. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897; 1951, **81**, 220.
- (37) E. E. LOCKETT et R. H. THOMAS. — *Nucleonics*, 1953, **11**, 14.
- (38) L. MEITNER et W. ORTMAN. — *Zeit. f. Phys.*, 1930, **60**, 143.
- (39) St. MEYER. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1928, **218**, 235.
- (40) St. MEYER et F. PANETH. — *Mitt. d. Inst. f. Rad.*, 1918, 104; *Wien. Ber.*, II a, **127**, 147.
- (41) D. MULDER. — *Physica*, 1940, **7**, 849.
- (42) I. PERLMAN, A. GHIORSO et G. T. SEABORG. — *Phys. Rev.*, 1949, **77**, 26.
- (43) A. PICCARD et L. MEYLAN. — *J. Phys. et Rad.*, 1933, **4**, 715.
- (44) A. POMPEI. — *J. Phys. et Rad.*, 1935, **6**, 471.
- (45) Th. RICHARDS. — *Zeit. f. Phys. Chem.*, 1905, **52**, 551.
- (46) C. RUNGE et J. PRECHT. — *Berlin Ber.*, 1903, **38**, 783.
- (47) E. RUTHERFORD et H. T. BARNES. — *Phil. Mag.*, 1904, **7**, 202.
- (48) E. RUTHERFORD. — *Wien. Ber.*, 1911, **120**, 303.
- (49) A. SANIELEVICI. — *Thèse Paris*, 1936.
- (50) E. SEGRÉ. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.
- (51) W. K. SINCLAIR et A. F. HOLLOWAY. — *Nature*, 1951, **167**, 365.
- (52) W. SWIETOSLAWSKI. — *J. of Am. Chem. Soc.*, 1921, **43**, 875.
- (53) W. SWIETOSLAWSKI et A. DORABIALSKA. — *C. R.*, 1927, **185**, 763.
- (54) W. SWIETOSLAWSKI et I. ZLOTOWSKI. — *C. R.*, 1935, **200**, 660.
- (55) A. TIAN. — *J. Chim. Phys.*, 1923, **20**, 132.

- (56) J. TOBAILEM. — *Ann. Physique*, 1955, **40**, 783.
 - (57) J. TOBAILEM et J. ROBERT. — *J. Phys. et Rad.*, 1955, **16**, 115.
 - (58) J. TOBAILEM et J. ROBERT. — *J. Phys. et Rad.*, 1955, **16**, 340.
 - (59) F. WAGNER. — 1950, A. N. L., 4 490-5.
 - (60) A. H. WAPSTRA. — *Physica*, 1952, **18**, 83.
 - (61) L. WERTENSTEIN. — *C. R. Soc. Sc. Varsovie*, 1917, **6**.
 - (62) L. WINAND. — *Thèse Paris*, 1939.
 - (63) D. K. YOVANOVITCH. — *C. R.*, 1924, **179**, 163.
 - (64) I. ZLOTOWSKI. — *J. Phys.*, 1935, **6**, 242.
-

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

Effet de la structure nucléaire
sur la loi statistique de l'énergie de liaison.

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 16 juin 1957.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PÉRÈS.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

Le Recteur de l'Académie de Paris,

JEAN SARRAILH.

